Série A, n°
N° d'ordre :

605

THÈSES

PRESENTEES

A LA FACULTÉ DES SCIENCES D'ORSAY
UNIVERSITÉ DE PARIS

POUR OBTENIR

LE GRADE DE DOCTEUR ES-SCIENCES PHYSIQUES

PAR

Chantal BRIANÇON-GERMAIN

1re THESE. — Etude des propriétés nucléaires de ^{223}Ra, noyau à déformation moyenne, et de certains phénomènes associés à la conversion interne.

2e THESE. — Propositions données par la Faculté.

Soutenues le 12/3/1970 **devant la Commission d'examen**

M. M. JEAN — Président.

M. J. TEILLAC
Mme H. LANGEVIN-JOLIOT
M. M. VALADARES
} Examinateurs.

Série A, n°
N° d'ordre :

605

THÈSES

PRESENTEES

A LA FACULTÉ DES SCIENCES D'ORSAY
UNIVERSITÉ DE PARIS

POUR OBTENIR

LE GRADE DE DOCTEUR ES-SCIENCES PHYSIQUES

PAR

Chantal BRIANÇON-GERMAIN

1re THESE. — Etude des propriétés nucléaires de ^{223}Ra, noyau à déformation moyenne, et de certains phénomènes associés à la conversion interne.

2e THESE. — Propositions données par la Faculté.

Soutenues le 12/3/1970 **devant la Commission d'examen**

M. M. JEAN — Président.

M. J. TEILLAC
Mme H. LANGEVIN-JOLIOT
M. M. VALADARES
} Examinateurs.

réalisée en collaboration avec Monsieur C.F. LEANG, grâce à qui par ailleurs, les expériences utilisant une électronique complexe ont pu être menées à bien. Que tous les deux trouvent ici mes remerciements amicaux.

Je ne saurais oublier l'aide précieuse que m'ont apportée les mesures d'intensités de raies d'électrons de conversion effectuées au spectrographe $\pi\sqrt{2}$, grâce à l'obligeance de Monsieur Sant'Ana DIONISIO qui a dirigé la mise au point de cet appareil au Centre.

Tous mes remerciements vont aussi à Mademoiselle Marie-Thérèse COMMAULT qui m'a effectué, avec une amicale gentillesse, de nombreux calculs au moyen de ses programmes.

Je remercie également Monsieur G.HILAIRE, ainsi que tout le personnel de l'Atelier de Mécanique pour l'aide constante et efficace que j'ai toujours reçue, aussi bien dans la construction des spectrographes, que dans la réalisation de nombreux dispositifs particuliers.

Je voudrais aussi remercier toutes les personnes qui ont contribué à la réalisation matérielle de cette thèse : Mademoiselle M. LEROY, Madame JOURDAIN, Mademoiselle M.PARE, Monsieur BRIEUGNE, avec un merci tout spécial pour Madame M. ARIANER qui, ces dernières années, a effectué pour moi de nombreux tracés de courbes et calculs et a totalement pris en charge toute l'illustration des publications et de ce travail.

Enfin, que tous mes collègues du Centre, administratifs, chercheurs et techniciens, à qui j'ai pu faire appel au cours de ce travail, trouvent ici tous mes remerciements pour l'aide amicale que j'ai toujours rencontrée.

TABLE DES MATIERES

I - INTRODUCTION

Chap. II - METHODES UTILISEES

I - Spectrométrie des électrons de conversion

I - 1 - Spectrographie magnétique à focalisation semi-circulaire

a - description des spectrographes 5

b - correction du champ 7

c - détection photographique 9

d - forme des raies 10

e - supports de sources 11

f - détermination des énergies et des intensités 12

I - 2 - Modifications apportées aux spectrographes classiques pour l'étude de certains effets extra-nucléaires.

a - pré-accélération des électrons 14

b - dispositif de piège à gaz radioactif avec pompage différentiel sur la source 15

c - dispositifs relatifs à l'étude des électrons émis en vol à la suite du recul α

- électrons émis par des atomes en vol 16

- dispositif de mesures de vies moyennes 17

I - 3 - Spectrographie à double focalisation $\pi\sqrt{2}$ 18

II - Spectrométrie γ

II - 1 - Spectrométrie directe 19

II - 2 - Spectrométrie de coïncidences

a - coïncidences $\alpha - \gamma$ 20

b - coïncidences $\gamma - \gamma$ 21

II - 3 - Mesures de vies moyennes par analyse du spectre γ émis par des atomes en vol. 21

Chap. III - ^{223}Ra, NOYAU A DEFORMATION MOYENNE

A - Historique 23

B - Etude expérimentale

B - 1 - Préparation des sources 27

B - 2 - Spectrométrie γ directe 28

a - procédé par renouvellement des sources

b - procédé par purification continue

B - 3 - Spectrométrie des électrons de conversion 33

B - 4 - Spectrométrie de coïncidences 36

a - coïncidences γ - γ : traitement de l'information 37

b - coïncidences α - γ 45

B - 5 - Mesures de vies moyennes

a - par déformation de la bande Doppler 48

b - par émission γ des atomes de recul en vol 50

B - 6 - Ensemble des résultats expérimentaux : discussion des transitions classées par niveau d'origine 64

C - Discussion du schéma de niveaux 83

Chap. IV - EFFETS EXTRA-NUCLEAIRES - PHENOMENES LIES A L'OBSERVATION D'ATOMES EN VOL A LA SUITE DU RECUL α

A - Effet Auger 127

A - I - Energies

1 - Couplage j - j pur 130

2 - Couplage L - S pur 132

3 - Couplage intermédiaire (calcul des éléments de matrice de l'interaction électrostatique). 135

A - II - Intensités, dans les différentes hypothèses de couplage 140

A - III - Spectre Auger KLL émis lors de la désintégration $^{233}Pa \longrightarrow ^{233}U$ 145

Résultats expérimentaux

A - IV - Comparaison théorie-expérience en fonction de Z 150

B - BANDES SATELLITES DANS LES SPECTRES DE CONVERSION INTERNE CONSECUTIFS A UNE EMISSION α

B - 1 - Mise en évidence par observation des électrons de conversion avec une source directe. Désintégration $^{227}Th \longrightarrow ^{223}Ra$ 156

B - 2 - Etats de charge résultant d'une conversion dans un atome isolé 169

B - 3 - Observation des électrons émis uniquement par des atomes en vol à la suite du recul α ($^{241}Am \longrightarrow ^{237}Np$) 172

B - 4 - Comparaison des résultats expérimentaux avec des calculs d'énergies de liaison dans des atomes ionisés (calculs H - F - S relativistes).

a - énergies de liaison dans des atomes ionisés 184

b - comparaisons théorie - expérience 187

V - CONCLUSIONS 200

Digitized by the Internet Archive
in 2026

https://archive.org/details/IA41550208_0014

I - INTRODUCTION

Initialement ce travail avait pour but d'éclaircir les propriétés nucléaires de quelques éléments de la famille radioactive de l'actinium 227. Cette famille traverse un domaine de déformations nucléaires très variées, aboutissant au plomb 207, noyau sphérique. D'une façon générale, cette région de déformation intermédiaire a en effet soulevé jusqu'à présent beaucoup de difficultés théoriques, cependant que les bases expérimentales étaient restreintes à un petit nombre d'isotopes, ceci étant dû à des conditions moins favorables de production et de périodes dans cette région (par exemple, pour les isotopes impairs du thorium, périodes de 0,1 sec, 8 m, 18,2 j, 7500 a pour, respectivement, les masses 223, 225, 227, 229 ; absence d'isotopes stables pour une production sélective, et compétition gênante entre les réactions (p, xn) et fission).

Nos efforts, au cours de ces dernières années, ont plus particulièrement porté sur les désintégrations de ^{227}Th, ^{223}Ra, ^{219}Rn, ^{215}Po, ^{211}Pb et ^{211}Bi. Les premières études effectuées avec les méthodes alors accessibles, c'est-à-dire spectrométrie γ directe et spectrométrie des électrons de conversion, montrèrent que les problèmes à résoudre demanderaient un grand effort de recherche et que des essais d'interprétation ne pourraient se faire qu'une fois acquis beaucoup plus de données expérimentales.

Nous présentons dans ce travail (chapitre III) l'étude de la désintégration $^{227}Th \xrightarrow{\alpha} {}^{223}Ra$ particulièrement complexe puisque le noyau de radium 223 possède 56 niveaux excités

détectés au-dessous de 1 MeV.

L'accumulation rapide des dérivés de ^{223}Ra nous a conduit à effectuer un très grand nombre d'expériences brèves avec des sources fréquemment renouvelées et à mettre au point des procédés de mesure avec purification continue pendant l'expérience, ou encore à distinguer les substances dérivées, en cours de mesures, par leurs propriétés atomiques aussi bien que nucléaires.

D'autre part, afin de mieux caractériser les propriétés des niveaux, deux procédés de mesures de vies moyennes, adaptés aux spectres à grande densité de lignes, ont été utilisés : la déformation de la bande Doppler des lignes de conversion, lorsque la source est soumise à un gradient de champ, et une méthode, nouvelle pour les émetteurs α : émission des rayonnements γ par des atomes en vol avec mesure de la distance parcourue entre la source et le point d'émission du photon.

Enfin, devant les difficultés d'attribution d'un nombre important de transitions, des spectres de coïncidences en multidimensionnel à grande matrice ont été constitués : α-γ(2^{19} canaux) et γ-γ(2^{20} canaux), qui ont apporté une solution à de nombreux problèmes.

L'ensemble des résultats, qui portent sur des centaines de transitions, permet aujourd'hui d'aborder le début de l'interprétation. Mais bien des questions resteront encore, car ce noyau, qui n'est pas très déformé, a comme caractéristique de ne céder que partiellement à une analyse en termes de modèles, une proportion importante de niveaux de spin bas échappant aux interprétations simples.

Au cours de ces travaux, deux problèmes sont apparus, qui, depuis, sont devenus des sujets de recherche parallèles et sont exposés au chapitre IV.

Dans les différentes désintégrations étudiées, citées ci-dessus, ainsi que dans celle de ^{233}Pa, qui ne figure pas dans ce travail, nous avons constamment rencontré dans les spectres d'électrons de conversion des lignes imbriquées dans les spectres Auger, en particulier les spectres KXY dont la connaissance s'est avérée nécessaire pour l'interprétation des spectres de conversion. Nous avons donc été amenés à étudier séparément le problème des lignes Auger KLL complexes, plus particulièrement dans le cas de la désintégration $^{233}Pa \longrightarrow {}^{233}U$ qui se prête bien à une telle étude, afin de disposer de repères sûrs pour les atomes de Z élevé, car, à part une mesure de la raie KL_1L_3 pour Z=94 et de la raie KL_3L_3 pour Z=78, il n'existait aucune détection de la "structure fine" des raies Auger KLL pour $Z > 71$.

Dans cette région les doublets sont en effet difficiles à séparer et un effort tout particulier a dû être porté sur l'amélioration de la détection des électrons par spectrographie à focalisation semi-circulaire, méthode qui, bien que très ancienne, garde des avantages indiscutables surtout dans le cas de spectres complexes : la résolution à mi-hauteur $\frac{\Delta B\rho}{B\rho}$ des raies L a varié dans cette étude de $1,2.10^{-4}$ (à 300 keV) à $2,5.10^{-4}$ (à 40 keV), ce qui est très compétitif avec les meilleurs spectrographes $\pi\sqrt{2}$ à condition de disposer d'une activité spécifique suffisante.

Dans le souci de tester la validité de certaines extrapolations à cette région de calculs réalisés dans différentes hypothèses de couplage des lacunes finales en électrons, nous avons effectué une mise au point de la théorie de l'effet Auger dans les différentes approximations habituellement utilisées et l'avons présentée sous une forme directement utilisable pour les expérimentateurs.

Une autre orientation des recherches a été prise à partir de l'étude initiale des niveaux de ^{223}Ra lorsque l'examen du spectre d'électrons de conversion révéla quelques lignes dont le profil anormal firent d'abord croire à des lignes complexes. Une étude plus détaillée montra qu'il s'agissait d'électrons émis par des atomes en vol à la suite du recul α, et déjà partiellement dépouillés de leur cortège électronique à la suite d'une conversion préalable. Dans les spectres d'électrons de conversion on doit donc tenir compte de ce phénomène, que nous avons appelé "bandes satellites", et qui vient modifier la forme des raies du côté des basses énergies, mais il nous est aussi apparu intéressant d'étudier ce problème en tant que lié à l'état de charge de l'atome, car il est un moyen d'atteindre les énergies de liaison d'atomes très ionisés (jusqu'à des charges 30).

Ceci a été réalisé avec la spectrométrie des électrons uniquement émis en vol ($^{241}Am \longrightarrow {}^{237}Np$) avec discrimination des deux principaux groupes de charges faibles ou nulles et élevées, ce qui a permis de confronter les déplacements en énergie observés avec des calculs théoriques de variation d'énergie de liaison en fonction de la charge de l'atome (calculs H. F. S. relativistes).

CHAPITRE II - Méthodes utilisées

Les méthodes qui ont été utilisées au cours de ces recherches ont varié avec les développements technologiques importants des dernières années. Ces méthodes comprenaient, au début, la spectrométrie semi-circulaire des électrons de conversion et les études de spectres de rayonnements γ conventionnelles par INa (Tl). Ultérieurement se sont ajoutées les méthodes utilisant les diodes Ge (Li), les coïncidences ($\alpha - \gamma$), et la spectrométrie des électrons de conversion par spectromètre $\pi\sqrt{2}$; d'autre part des modifications importantes de ces méthodes ont été apportées pour l'étude des spectres aussi bien d'électrons de conversion que des rayonnements γ des atomes en vol qui se présentent toujours dans le cas de sources minces émettrices α. Nous résumons ci-dessous l'essentiel des méthodes utilisées au cours du travail, en reportant dans les chapîtres concernant les résultats expérimentaux les détails propres à chaque type d'expérience.

I - Spectrométrie des électrons de conversion

I - 1 Spectrographie magnétique à focalisation semi-circulaire

La spectrographie magnétique à champ homogène a été la première méthode d'analyse de spectres de vitesses de particules chargées ; c'est une très vieille méthode, presque contemporaine de la découverte de la radioactivité, puisque c'est en 1914 que Danysz [DA (11)] a appliqué pour la première fois la méthode de focalisation semi-circulaire aux groupes d'électrons monoénergétiques émis dans une désintégration radioactive (on ne parlait pas encore à cette époque d'électrons de conversion, ne connaissant pas l'origine de ces électrons monocinétiques).

Cette méthode reste à l'heure actuelle, grâce à l'amélioration des qualités des matériaux magnétiques, et

photographiques, une technique qui présente de grands intérêts : elle permet d'explorer simultanément une grande plage d'énergie d'un spectre, avec un grand pouvoir séparateur et tous les avantages des propriétés d'intégration de la méthode photographique. Néanmoins les désavantages bien connus sont : l'angle solide faible, la sensibilité médiocre (variable avec l'énergie) des émulsions photographiques.

Ceci fait que cette méthode n'est avantageusement applicable que pour les corps d'une activité spécifique suffisante, et c'était le cas des éléments qui ont été étudiés dans ce travail.

I - 1 - a Description des spectrographes

Les spectrographes à détection photographique mis au point sont à aimant permanent et du type représenté sur les figures (II - 1) et (II - 2).

La figure II - 1 montre l'ensemble des plaques polaires et du circuit magnétique. L'enceinte à vide est placée dans l'entrefer E et est fermée par les plaques polaires P', elles-mêmes séparées des plaques de fermeture P du circuit magnétique par un petit entrefer "e" d'air. Les plaques sont en fer doux Armco.

La figure II - 2 montre l'enceinte à vide avec une série de diaphragmes qui empêchent la diffusion sur les pièces polaires et délimitent le faisceau utile dans le sens radial ainsi que le dispositif spectrographique proprement dit qui comprend :

- un magasin tournant à trois évidements pouvant recevoir des plaques ou films photographiques.

- l'ensemble support de sources et fente de définition F, séparé du magasin de films photographiques par un blindage.

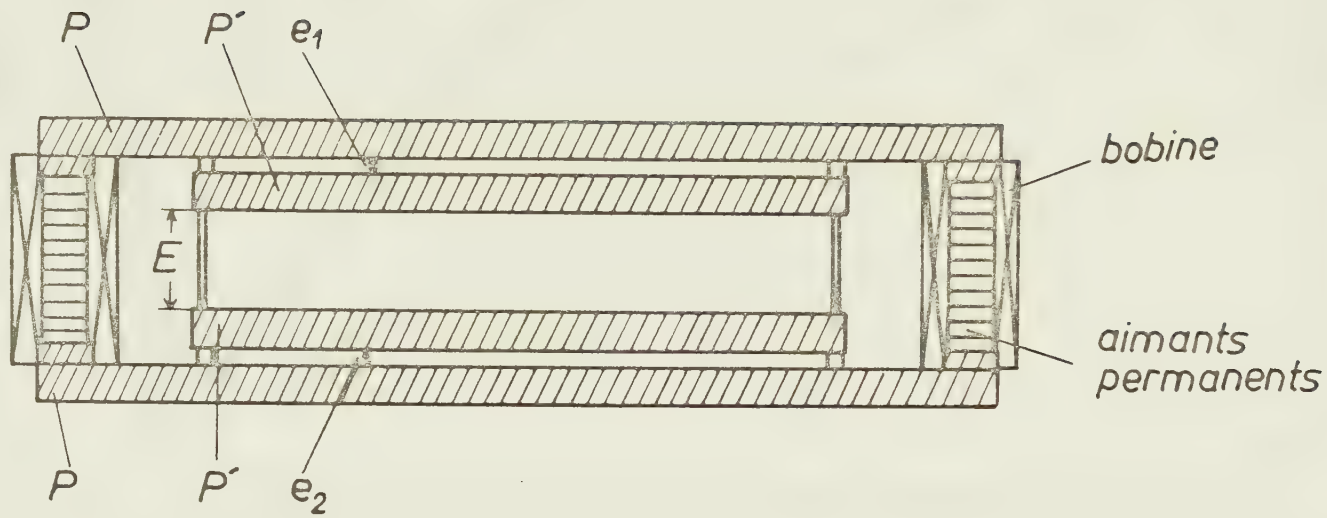


Fig. II-1

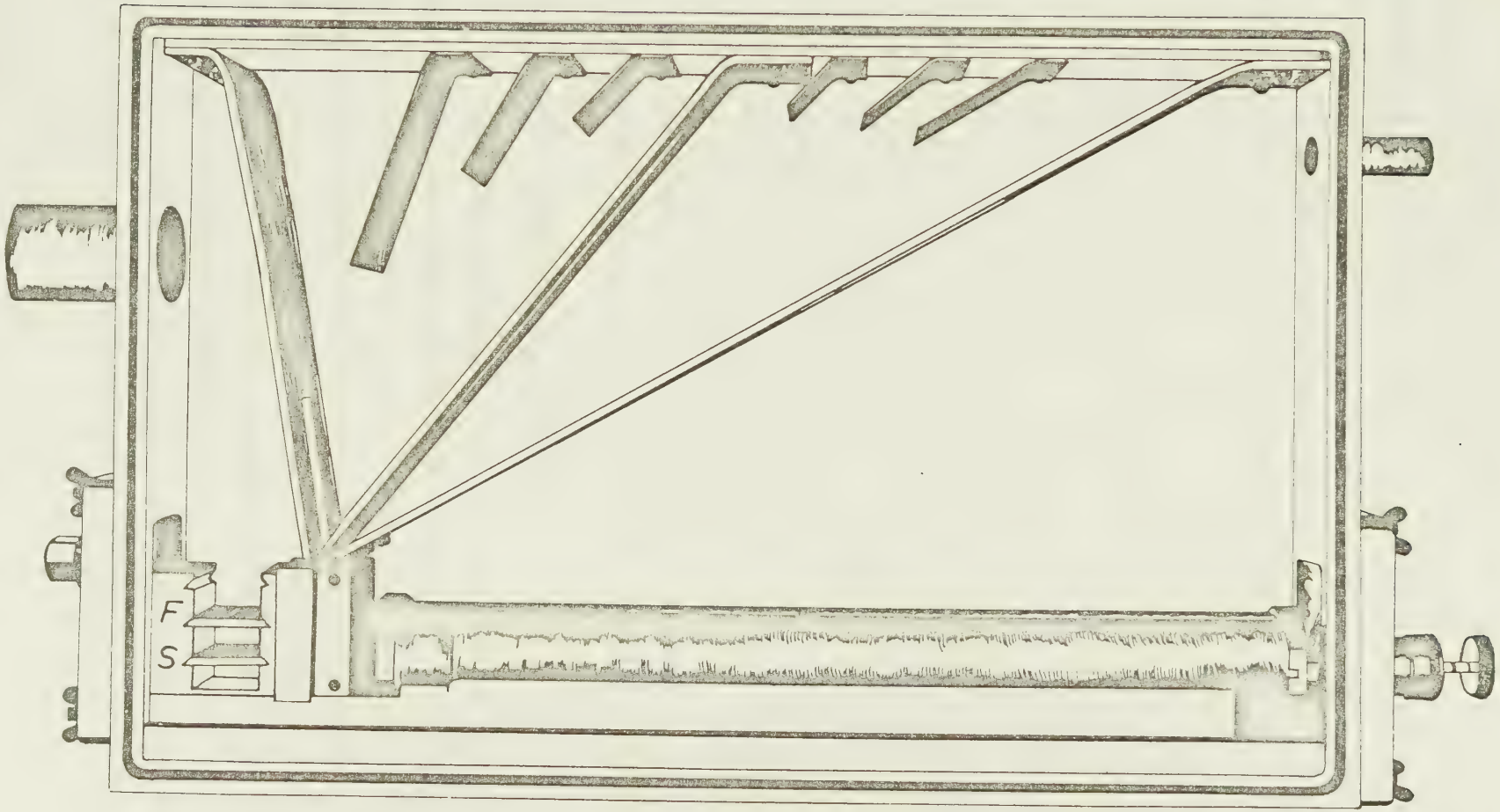


Fig. 11-2

La plupart du temps nous avons utilisé la géométrie source fine (S) - fente large (F) dans laquelle on obtient la focalisation dans le plan de la fente de définition F. L'ensemble du spectrographe se trouve dans une pièce à température constante ($\pm$ 0,2°) : en effet l'acier magnétique possède un coefficient de température important ($\frac{\Delta H}{H} \sim 3$ à $5.\ 10^{-4}$ par degré) auquel viennent s'ajouter les variations de champ dues aux dilatations mécaniques ainsi que les variations, souvent inhomogènes, de la perméabilité du circuit magnétique de fermeture. L'ensemble de ces effets peut atteindre $\frac{\Delta H}{H} \simeq 1.\ 10^{-3}$ par degré. Pour certaines expériences très précises nous avons été amenés à stabiliser la température du spectrographe à 0,02 degré près au moyen d'un réchauffement uniforme commandé par un pont à thermistance suivi d'un amplificateur continu. Le potentiel donné par ce dernier est mesuré par un voltmètre numérique couplé à un enregistreur. On peut ainsi pour chaque expérience disposer d'une courbe donnant la fréquence des écarts de température et apporter éventuellement aux résultats les corrections correspondantes. D'autre part les spectrographes sont munis de systèmes de sécurité permettant l'arrêt automatique de l'exposition en cas de coupure d'électricité.

I - 1 - b Correction du champ

Aux basses inductions, le fer, même très doux, présente des variations de perméabilité qui forcent à recourir à une retouche du champ. Après divers essais, la méthode retenue est celle des tiroirs de correction qui utilise les deux petits entrefers e_1 et e_2 (Fig. II - 1) qui encadrent l'entrefer principal E. Le champ est ajusté par introduction soit de feuilles de ferro-nickel à grande perméabilité, soit de lames de fer Armco dans les tiroirs d'air : nous avons procédé par méthode différentielle avec des bobines de grande surface développée ($\sim 5\ m^2$).

Dans cette correction, il a été tenu compte d'un facteur important qui est la déformation des plaques polaires lors de la mise sous vide, qui s'accompagne d'une augmentation du champ au centre du spectrographe, de l'ordre de $2^{o}/_{oo}$ par fléchissement des plaques polaires P', malgré leur épaisseur de 35 mm. Après compensation d'une part des inhomogénéités locales du fer, d'autre part des variations du champ en chaque point dues au fléchissement des plaques polaires sous vide, le champ a été obtenu avec une homogénéité de $\frac{\Delta H}{H} \sim 3.\ 10^{-4}$ sur la surface utile du spectrographe.

Une telle correction n'est valable que pour un seul champ donné et dépend essentiellement du cycle d'aimantation suivi. Pour nos spectrographes une aimantation dans le sens croissant du champ donne une dépression de champ dans la région centrale des plaques polaires, tandis qu'une aimantation dans le sens décroissant laisse un excédent de champ au centre.

Ces effets peuvent atteindre $1^{o}/_{oo}$ de la valeur du champ, le dernier cycle, dit de stabilisation du champ, est donc extrêmement important. Pratiquement, nous cherchons la meilleure forme de champ, c'est-à-dire comportant le moins de corrections nécessaires, intermédiaire entre ces deux formes, en opérant une légère désaimantation à partir d'un champ un peu supérieur à la valeur désirée. Ces conclusions rejoignent celles de P. Paris et G. Seige [PA (65)] .

Cette question d'homogénéité est très importante, comme nous le verrons en particulier dans le chapître IV, où certains effets extra-nucléaires, demandant une très haute résolution, ont pu être mis en évidence.

Les figures II -3 a et II -3 b montrent des résultats que l'on peut atteindre : $\frac{\Delta(B\rho)}{(B\rho)} = 2,5.\ 10^{-4}$ pour un spectre de

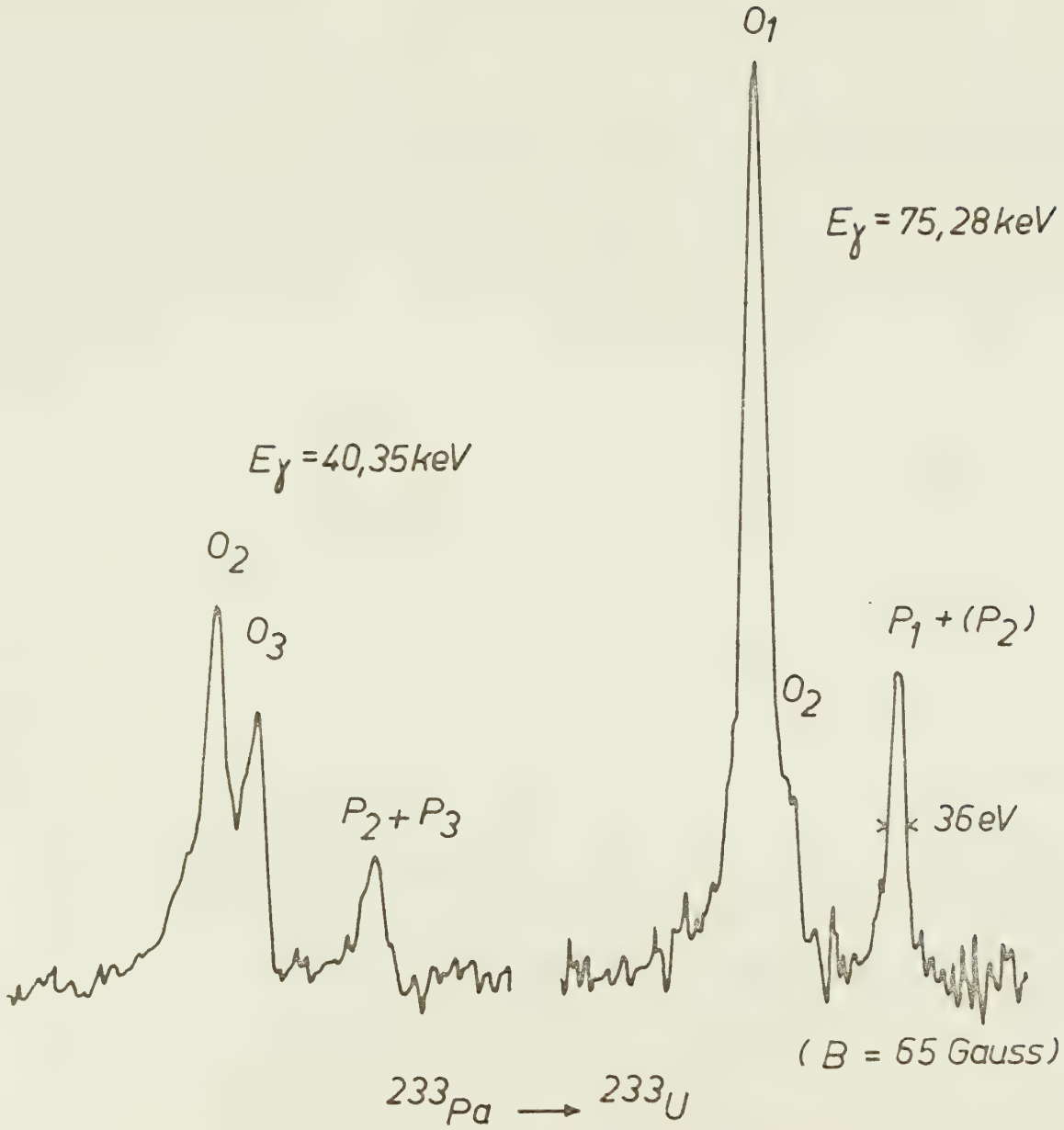

O_1
$E_\gamma = 75,28\,keV$
$E_\gamma = 40,35\,keV$
O_2
O_3
$P_1 + (P_2)$
O_2
$P_2 + P_3$
36 eV
(B = 65 Gauss)
$^{233}Pa \longrightarrow {}^{233}U$

Fig.II-3a

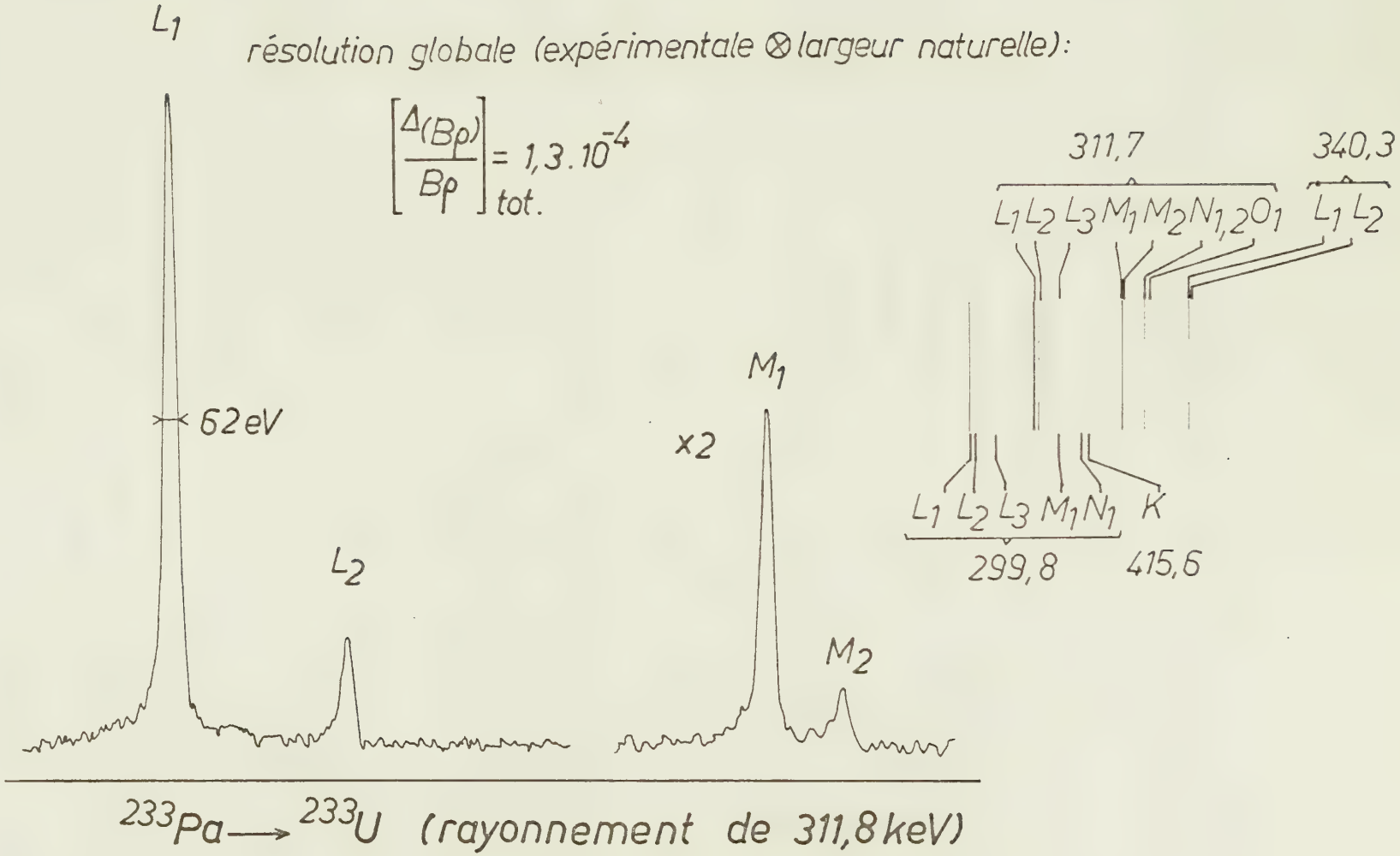

L1
résolution globale (expérimentale ⊗ largeur naturelle):
[Δ(Bρ)/Bρ]tot. = 1,3.10^-4
62 eV
L2
x2
M1
M2
311,7
340,3
L1 L2 L3 M1 M2 N1,2 O1
L1 L2
L1 L2 L3 M1 N1
K
299,8
415,6
233Pa → 233U (rayonnement de 311,8 keV)

Fig.II-3b

basse énergie avec ouverture angulaire notable, et $\frac{\Delta(B\rho)}{B\rho}=1,2.10^{-4}$ ($E\gamma$ = 300 keV) qui a été obtenue avec un autre type de support de sources et une ouverture angulaire moindre.

I - 1 - c Détection photographique

Les émulsions photographiques employées ont été essentiellement le film Kodirex à simple couche et le film Ilford Ilfex G à deux couches de 12,5 μ séparés par un support plastique d'environ 200 μ . Ce dernier a été utilisé pour sa rapidité mais la double couche présente des inconvénients certains :

- aux basses énergies (< 80 keV) seule la première couche est efficace et alors la deuxième ne sert qu'à contribuer au fond général.

- aux énergies supérieures à 150 keV, si la deuxième couche commence à être efficace et peut être intéressante pour de faibles intensités, la présence du support plastique de 200 μ d'épaisseur provoque des diffusions d'électrons et par là-même un élargissement de la raie observée.

Nous avons donc été amenés à utiliser ces émulsions Ilford double-couche pour leur rapidité, mais, après une exposition, pour l'étude des raies assez intenses, la deuxième couche était soigneusement enlevée.

Le film Kodirex, un peu moins sensible, présente un grain plus fin que l'émulsion Ilfex (la granulation ajoute un flou supplémentaire de l'ordre de 10 μ).

De ce fait, ces deux émulsions conduisent à des densitogrammes de même précision, la plus grande sensibilité étant obtenue au prix de plus grandes fluctuations de noircissement.

La densité optique produite dans une émulsion photographique est fonction de l'énergie abandonnée dans la couche sensible, c'est-à-dire fonction de l'énergie et du nombre d'électrons incidents. Malgré l'existence d'un certain nombre de travaux semi-empiriques sur cette question [AR (39), SL (62)] , en définitive seul un étalonnage expérimental a une valeur utilisable car les facteurs de sensibilité, d'une part varient d'un lot d'émulsion à l'autre, d'autre part dépendent étroitement du traitement révélateur après exposition (température, temps, concentration et état du révélateur). Le type de courbes d'efficacité de ce film peut être trouvé dans les thèses de J. Sant'Ana [SA (63)] et F. Gautier [GA (65)] .

I - 1 - d. Forme des raies

Dans le cas des émetteurs β étudiés, la forme des raies est conforme aux nombreux calculs qui ont été faits sur ce sujet (voir [SA (63)]) ; dans le cas d'une source idéalement mince la forme de la raie résulte de la convolution de la forme théorique de la raie de conversion par la forme de la raie de résolution du spectrographe, le recul β dans la source ayant une influence négligeable. A cela vient se conjuguer une queue du côté des basses énergies, plus ou moins importante suivant l'énergie et due aussi bien à l'épaisseur de la source qu'à la rétrodiffusion par le support de la source, d'où la nécessité, quand cela est possible, d'utiliser des supports de sources, minces (10 à 100 $\mu g/cm^2$).

Dans le cas des émetteurs α où l'énergie de recul n'est plus négligeable ($E_{recul} \sim 110$ keV, parcours $\sim 10 \mu g$ dans la matière du support de source), si la source est idéale, 50% des atomes reculent dans le support de source et les électrons émis par ces atomes contribuent à une raie qui est affectée d'une

queue du côté des basses énergies due à l'enfoncement des atomes dans le support de source, tandis que 50% des atomes reculent dans le vide et émettent en vol des électrons, leur communiquant une énergie supplémentaire. La raie se trouve ainsi affectée d'une épaule Doppler du côté des hautes énergies (nous reviendrons sur cet effet dans le chapître IV). Naturellement avec l'épaisseur de la source la proportion d'atomes qui reculent dans le vide diminue et une queue supplémentaire vient s'ajouter du côté des basses énergies.

Ceci pose le problème de la nature et de l'épaisseur du support de source dont il sera question dans la section suivante de ce chapître.

Si l'on veut supprimer les reculs dans le vide, on est amené à recouvrir la source d'une dizaine de $\mu g/cm^2$ de métal volatilisé, on a alors affaire à une absorption qui est notable pour les faibles énergies ; aussi n'at-il été recouru à ce procédé que pour des énergies supérieures à $\sim$ 50 keV.

Ainsi, pour des sources émettrices α, par la nature même des rayonnements mis en jeu, aux basses énergies on ne peut observer que des raies d'électrons entachées d'une certaine déformation inhérente à l'émission α elle-même.

I - 1 - e. Supports de source

La pénétration des reculs dans le support de la source varie avec la nature de ce support. Pour les substances cristallines, quelques % des reculs qui ont une orientation convenable vis-à-vis des axes cristallins ont des parcours très supérieurs par effet de canalisation cristalline. Théoriquement un milieu pseudo-liquide, comme le verre, conviendrait mieux comme support, mais on se heurte alors aux inconvénients évidents d'une source électriquement isolée.

D'autre part dans le cas des émetteurs α, le rayonnement α a une action particulièrement destructrice sur le support de source, et donne lieu à une pénétration partielle rapide de la substance active à l'intérieur du milieu du support par migration le long des défauts produits par bombardements α. Ces deux effets nous ont conduit, dans certains cas, à déposer la source sur une feuille mince (50 à 60 $\mu g/cm^2$) d'oxyde d'aluminium, ce qui permet d'obtenir un fond général moindre. Néanmoins, des sources assez intenses émettrices α comme celles que nous avons utilisées (10 à 20 mCi/cm^2), ne donnent une résolution élevée que pendant quelques jours.

I - 1 - f. Détermination des énergies et intensités

- Energies : le support dans lequel vient se loger le film est muni d'une série de crans, dont les images sur le film servent de repères pour les raies d'électrons. Ces crans ont été mesurés à 2/100 mm près sur le spectrographe et servent ainsi à tenir compte de l'alongement, dans le cas de films photographiques, provoqué par le traitement chimique après exposition. Les raies d'électrons ont été repérées par leur sommet par rapport à ces crans, soit au comparateur d'Abbe (Zeiss Jena), soit par une méthode d'analyse densitométrique du cliché. Pour tenir compte des inhomogénéités résiduelles du champ, nous avons toujours procédé par auto-étalonnages en énergie (en général avec le dépôt actif du thoron ou bien $^{233}Pa \longrightarrow {}^{233}U$, dont il sera question au chapître IV). A partir de cet étalonnage, un programme à l'Univac 1108 nous donne un "best-fit" du champ pour chaque énergie, calcule les énergies d'électrons inconnues et en fait les sommes avec les énergies de liaison correspondant aux différentes couches électroniques.

- Intensités : Les clichés obtenus ont été analysés de deux façons au microdensitomètre Vassy de la Compagnie des Compteurs :

- la première, classique, avec un simple défilement de la table porte-film devant une fente d'analyse de hauteur maximum 4 mm.

- la deuxième, réalisée par M. Frilley [FR (67)] consiste à animer la table porte-film d'un mouvement de va-et-vient perpendiculaire au sens de défilement du film, de manière à intégrer l'information sur une plus grande largeur de film (jusqu'à 12mm) et faire ainsi la moyenne des fluctuations dues au grain du film. La figure II - 4 montre un exemple de densitogramme de lignes d'électrons de ^{223}Ra avec et sans balayage perpendiculairement au déplacement de la table porte-film.

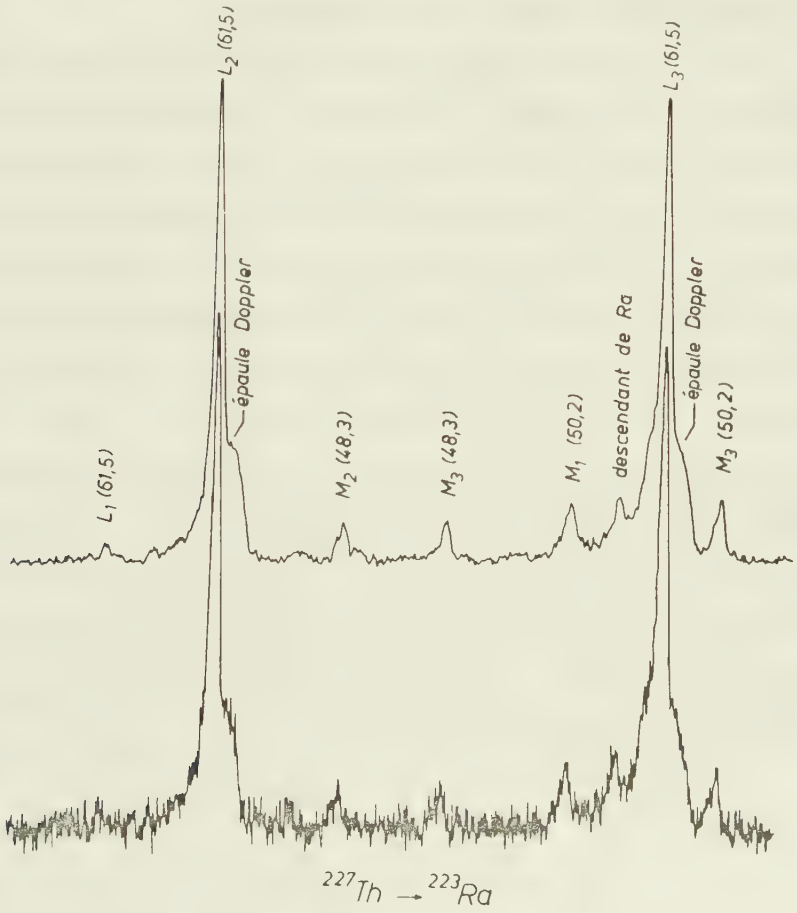


Fig. II - 4

Pour tenir compte de la correction de noircissement dûe au nombre d'électrons incidents, et pour éviter les effets de saturation qui peuvent en résulter, nous avons toujours procédé par séries d'expositions de temps croissants, et par quelques vérifications au spectromètre $\pi\sqrt{2}$ sur certaines raies prises pour étalons.

En ce qui concerne la correction en fonction de l'énergie des électrons, nous avons préféré, pour chaque exposition construire une courbe d'efficacité tenant compte des mesures effectuées à l'aide d'un spectromètre à double focalisation $\pi\sqrt{2}$ et d'autoétalonnages quand cela était possible.

I - 2 Modifications apportées aux spectrographes classiques pour l'étude de certains effets extra-nucléaires.

I - 2 - a. Pré-accélération des électrons

Les émulsions photographiques utilisées étant de sensibilité médiocre aux basses énergies, (l'émulsion Ilford-X ray ayant une couverture de protection de $\sim 5\,\mu$ de gélatine pure a un seuil de détection des électrons à environ 10 keV), j'ai été amenée à utiliser la méthode de préaccélération des électrons qui a été mise au point la première fois sur un spectrographe à 180° avec détection photographique par S. Rosenblum, Sant'Ana Dionisio et M. Valadares [RO (56)] : une tension appliquée entre la source et la fente de définition du faisceau accélère les électrons. Par cette méthode, le gain d'efficacité est dû à l'augmentation d'énergie, mais aussi, par un effet de focalisation électrostatique, il y a un accroissement du nombre d'électrons qui traversent la fente, ceci étant étroitement lié à la géométrie de la source, de la fente et de leur environnement.

Différents calculs ont été effectués concernant ce dernier effet, en particulier ceux de Sant'Ana [SA (63)] et ceux de Slätis [SL (65)] , évaluant la déformation des trajectoires des électrons dans le cas d'un champ magnétique et électrique croisés. Expérimentalement J. Delesalle [DE (58)] puis F. Gautier [GA (65)] ont évalué les noircissements dûs à ces deux effets pour certaines valeurs du champ électrique, en fonction de l'énergie.

Pratiquement, quand cela était possible, nous avons procédé à des corrections d'intensités par étalonnage pour tenir compte de ces deux effets.

I - 2 - b. Dispositif de piège à gaz radioactif avec pompage différentiel sur la source.

Dans le cas de l'étude de la famille de ^{227}Th, dont un des produits de filiation est ^{219}Rn, il est nécessaire de piéger le radon comme l'indique le dispositif représenté sur la figure II - 5. La source est enfermée dans une enceinte dans laquelle est pratiquée uniquement la fente F de définition du faisceau. En plus du groupe de pompage sur l'enceinte du spectrographe, un autre groupe pompe sur l'enceinte de la source S, dans laquelle est disposée une pièce en cuivre en forme de U qui vient se placer de part et d'autre de la source, la partie supérieure étant évidée d'une fente F' refroidie par l'azote liquide et qui laisse passer le faisceau utile d'électrons.

I - 2 - c. Dispositifs relatifs à l'étude des électrons émis en vol à la suite du recul α.

Dans l'étude de certains effets extra-nucléaires qui seront décrits au chapître IV nous avons été amenés à utiliser les propriétés de recul des émetteurs α et à travailler sur les électrons émis en vol par les atomes de recul.

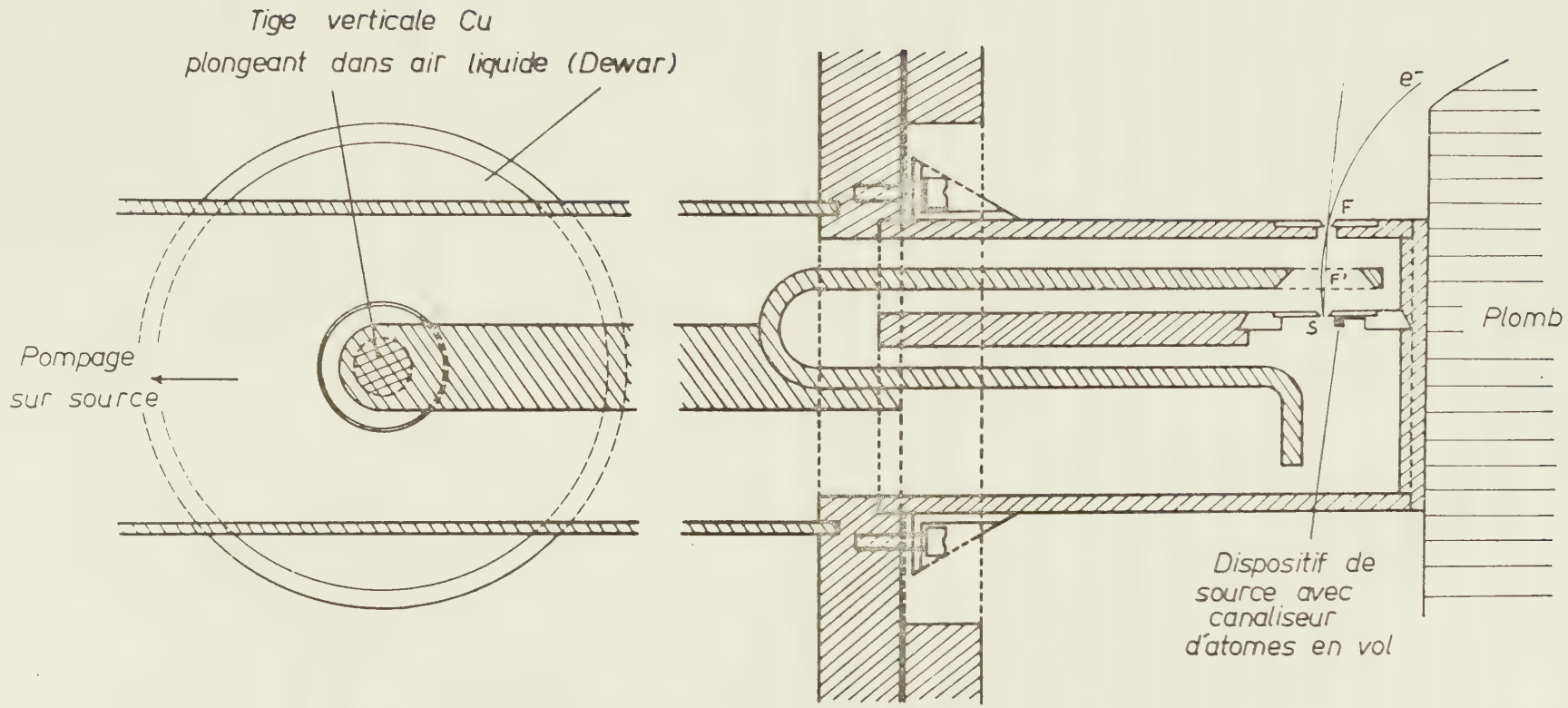

Tige verticale Cu
plongeant dans air liquide (Dewar)
Pompage
sur source
e⁻
F
F'
S
Plomb
Dispositif de
source avec
canaliseur
d'atomes en vol

Fig. II-5

I - 2 - c_1. Electrons émis par des atomes en vol

Etant donnée la complexité des raies d'électrons dans le cas de sources d'émetteurs α (section I - 1_d de ce chapître), nous avons voulu éliminer de la raie d'électrons la composante due aux atomes ayant reculé dans le support de source et observer uniquement les électrons émis par les atomes en vol. Le dispositif utilisé est représenté sur la figure II - 6 qui montre la modification de principe apportée au côté source du spectrographe : la source classique est remplacée par une petite boîte munie d'une fente F_1. La substance radioactive est déposée sur une ou deux plaques parallèles au champ magnétique et presque perpendiculaires au plan de la fente F_1, une légère inclinaison tenant compte du rayon de courbure des trajectoires d'électrons. Devant ces deux plaques, des volets ou des plaques percées de trous canalisent les atomes de recul. Ainsi la fente F_2 de définition du faisceau d'électrons ne "voit" pas directement la source ni les atomes projetés sur les canaliseurs et on n'observe que les électrons émis par les atomes en vol à la suite du recul α. Cette méthode a

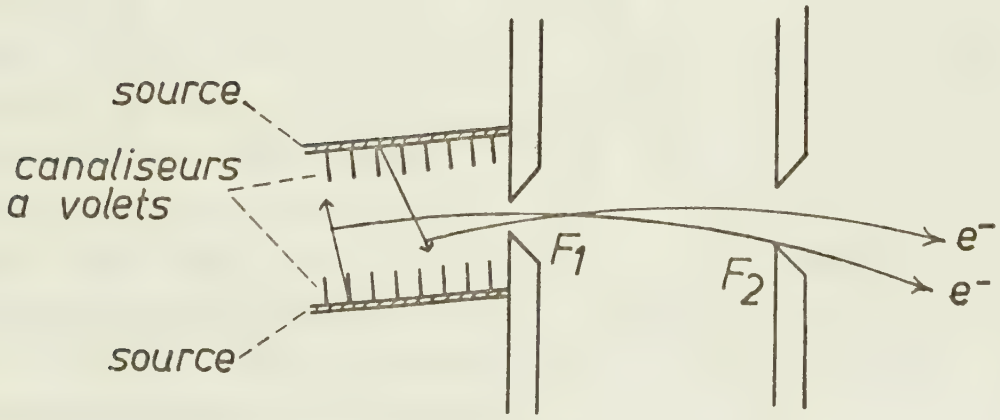
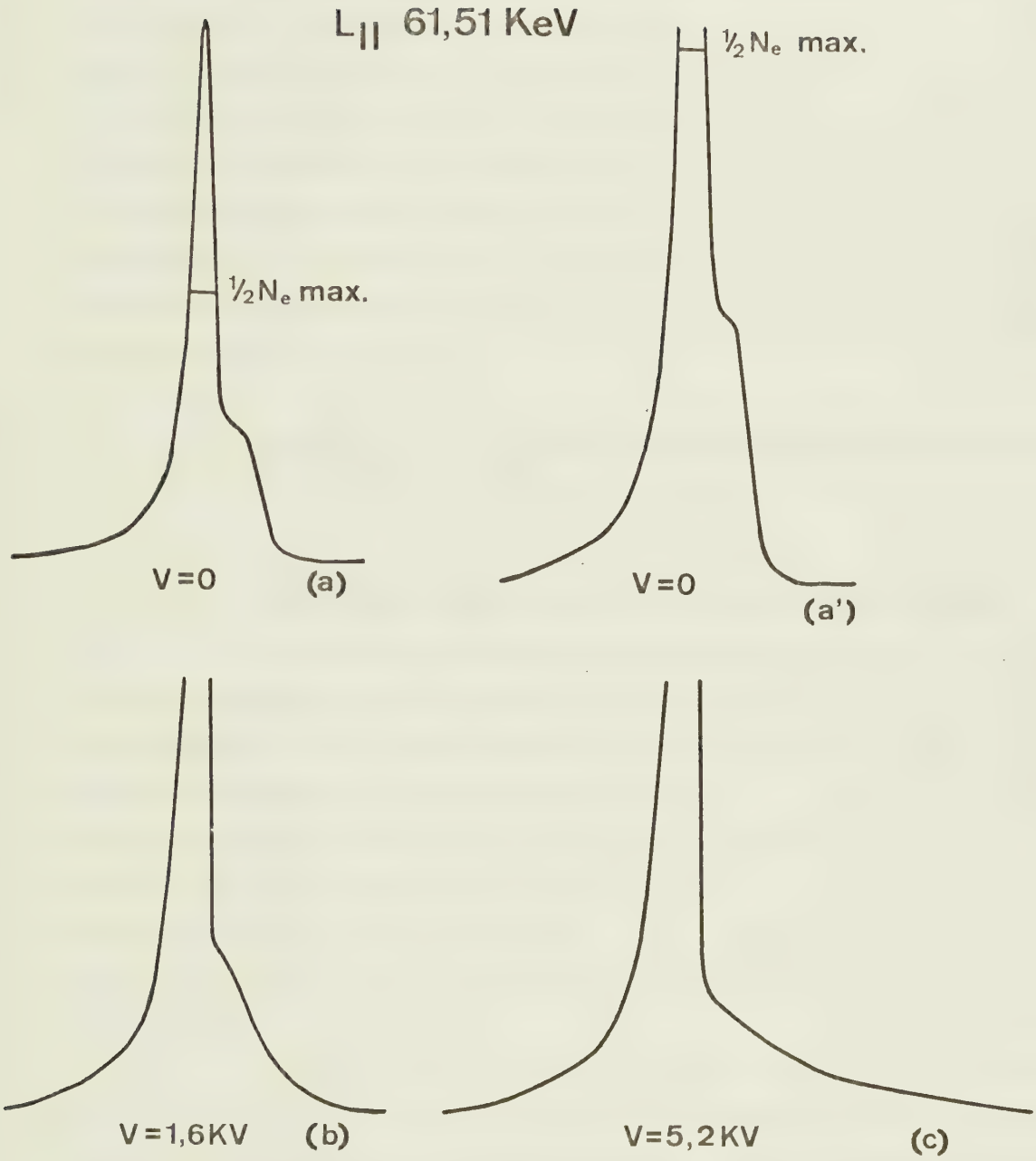


Fig. II - 6

d'abord été appliquée à la désintégration $^{241}Am \longrightarrow {}^{237}Np$ car la période du niveau considéré est suffisamment grande pour permettre des dimensions aisément réalisables du dispositif de source : en effet, la période étant de 68 ns, la distance de recul correspondant à la vie moyenne est $\sim$ 25 mm. Dans le cas de la désintégration $^{227}Th \longrightarrow {}^{223}Ra$ pour laquelle les niveaux considérés ont une période $\sim 9 . 10^{-10}$ s, la distance de recul correspondante est $\sim$ 3/10 mm et le dispositif a dû être miniaturisé pour conserver une efficacité suffisante : le canaliseur placé devant la source est formé de volets de chrysocale d'épaisseur 5/100 mm, de largeur 0,2 mm et espacés de 0,15 mm.

I - 2 - c_2. Dispositif de mesures de vies moyennes

Les atomes reculant dans le vide après l'émission α émettent des électrons de conversion à distance de la source. Si on applique une tension de décélération entre la source et la fente, les électrons émis à une certaine distance de la source seront moins décélérés que ceux émis par les atomes ayant reculé dans la source. Lorsqu'on applique une telle tension, il y a donc différence de comportement entre la composante de la raie d'électrons émis en vol et la composante d'électrons émis par des atomes sur la source. C'est ce que montre la figure II - 7 : on observe un déplacement vers les hautes énergies de l'épaule Doppler par rapport à la raie d'électrons émis par des atomes sur la source, accompagné d'un élargissement et d'un applatissement dus à la loi exponentielle de désexcitation du niveau. On peut ainsi atteindre la période du niveau puisque les distances auxquelles sont émis en vol les électrons sont fonction de cette période. Cette méthode a été trouvée par T. Novakov, J.M. Hollander et R.L. Graham [NO(64)] qui ont effectué leurs mesures avec un spectrographe $\pi\sqrt{2}$. Nous avons appliqué cette méthode au spectrographe semi-circulaire, ce qui a soulevé des problèmes importants de sources



Déformation de la bande Doppler
en fonction de la tension de décélération.

Fig. II - 7

dont l'activité spécifique doit être bien plus élevée, mais ce qui présente l'avantage d'obtenir des renseignements simultanément sur un grand nombre de raies de conversion.

Pratiquement, on a réalisé un dispositif (Figure II-8) qui permet de décélérer les électrons entre la source S et la grille intermédiaire G, et de les réaccélérer entre la grille G et la fente F de manière à les replacer à la même énergie quelle que soit la tension de décélération (la distance source S - grille G étant grande devant les distances correspondant aux périodes concernées, l'accélération entre grille et fente ne produit pas l'effet de déformation de la bande Doppler qui existe dans le voisinage de la source).

La gamme des périodes favorables pour cette méthode s'étend de $5.\ 10^{-11}$ s à 10^{-9} s.

I - 3. Spectrographe à double focalisation $\pi\sqrt{2}$.

Les intensités relatives déterminées par méthode photographique, dans laquelle de nombreux facteurs non linéaires interviennent, ont été accrochées à un certain nombre de mesures absolues effectuées au spectrographe $\pi\sqrt{2}$. En particulier les rayonnements M1 ou E2 pour lesquels il existe de grandes différences entre les intensités des raies de conversion L, ce qui est défavorable pour la méthode photographique, ont été examinés afin de pouvoir fixer les taux de mélange M1 + E2.

D'autre part, lorsqu'un rayonnement n'est détecté que par sa raie K il est intéressant de déterminer son intensité en valeur absolue, ce qui, en liaison avec les intensités γ absolues permet de déterminer la multipolarité. Cette détermination en valeur absolue des intensités, dans le cas d'un émetteur α, a été faite en étalonnant les sources, avec une jonction au

silicium et en utilisant pour étalons d'intensités une source de ^{228}Th à l'équilibre avec ses dérivés.

Pour cette étude nous avons utilisé le spectrographe $\pi\sqrt{2}$ de 50 cm de rayon, construit par Nuclesa (Suède) et mis au point au Centre par Mr. Sant'Ana. La détection a été étudiée par Mr. C. Vieu : un compteur à fenêtre mince et à coupure électronique rapide de la décharge permet d'atteindre des taux de comptage de 10.000 coups par seconde sans correction sensible.

II - Spectrométrie γ

II - 1. Spectrométrie directe

La spectrométrie γ directe a été réalisée d'une façon classique, essentiellement avec une diode Ge(Li) de 3 cm^3 de volume, irradiée par la tranche.

Dans un premier stade celle-ci avait une résolution de 1,7 keV à 100 keV et les expériences à moyennes et hautes énergies ont été effectuées avec cette résolution. Depuis un an cette diode a été traitée à nouveau et dotée d'un nouveau préamplificateur refroidi, ce qui a permis de porter la résolution à 0,9 keV à 100 keV.

L'ensemble d'analyse électronique étant conventionnel (amplificateur Tennelec avec pôle zéro), chaîne d'analyse Intertechnique 4096 canaux, ne sera pas décrit ici. Grâce à la bonne stabilisation de la température, la dérive restait inférieure à 1/2 canal par semaine.

D'autre part, nous avons quelquefois utilisé des sources intenses (quelques mCi) devant lesquelles était placé un canaliseur en cupro-tungstène (densité 18) de 6 cm d'épaisseur, de manière à n'utiliser que la partie centrale de la jonction : cette méthode

permet de diminuer notablement le fond général par diminution des Compton , d'autre part les raies se trouvent affectées de moins de queue vers les basses énergies, d'où un meilleur contraste sur le fond, ce qui est utile surtout pour les raies de faible intensité.

Dans le cas du spectre γ émis dans la désintégration $^{227}Th \longrightarrow {}^{223}Ra$, où l'accumulation des dérivés est très gênante, nous avons procédé soit par renouvellement fréquent des sources, soit, pour obtenir des spectres à haute statistique, en adaptant au dessus de la jonction un dispositif, qui sera décrit plus loin, de purification continue, simultanée aux mesures.

II - 2. Spectrométrie de coïncidences

a - Coïncidences $\alpha - \gamma$

Deux séries d'expériences de coïncidences α(Si - Li) - γ(Ge - Li) en représentation multidimensionnelle ont servi à préciser certaines attributions de transitions dans le ^{223}Ra, là où sur la base des seules différences d'énergie, plusieurs interprétations étaient possibles, étant donnée la complexité du schéma.

Les expériences antérieures à l'existence du calculateur IBM 360-50 à Orsay ont été effectuées avec une diode Ge - Li de 3 cm^3 et de bonne résolution, les résultats étant enregistrés sur les 4096 canaux d'un bloc mémoire Intertechnique, mais ne pouvant couvrir qu'une gamme d'énergie restreinte.

Ultérieurement cette méthode a été étendue simultanément à toutes les énergies α, avec une diode Ge - Li de 20 cm^3, et 2^{19} canaux (512 x 1024), les résultats étant cette fois-ci accumulés et traités par le calculateur IBM 360-50.

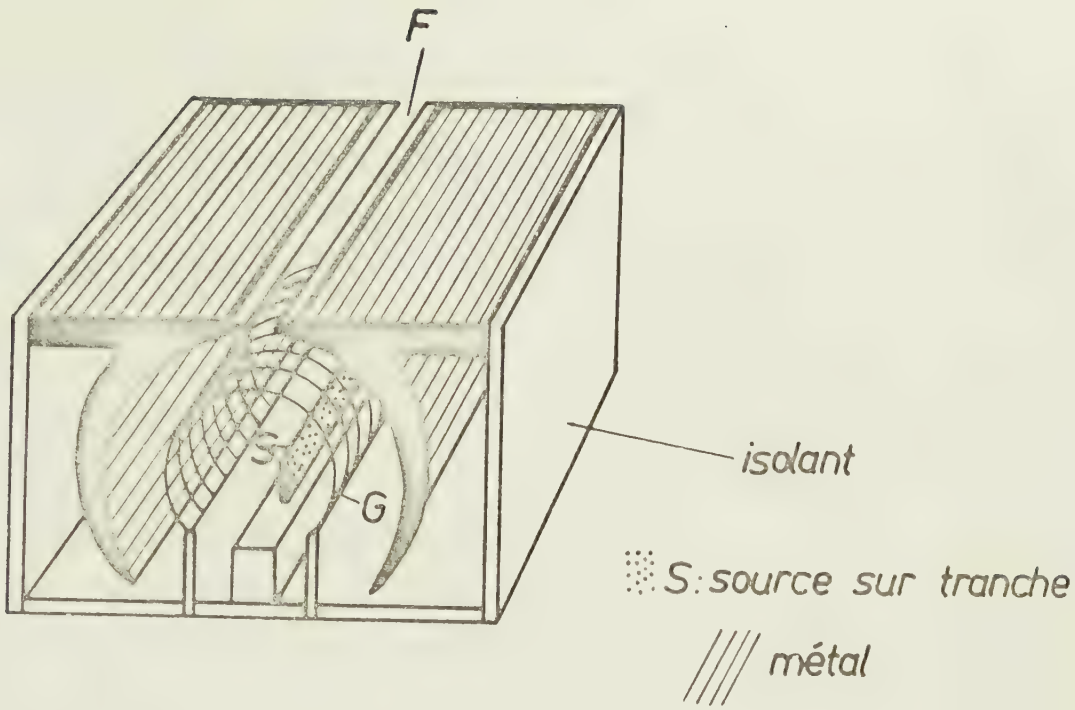


Fig. II-8

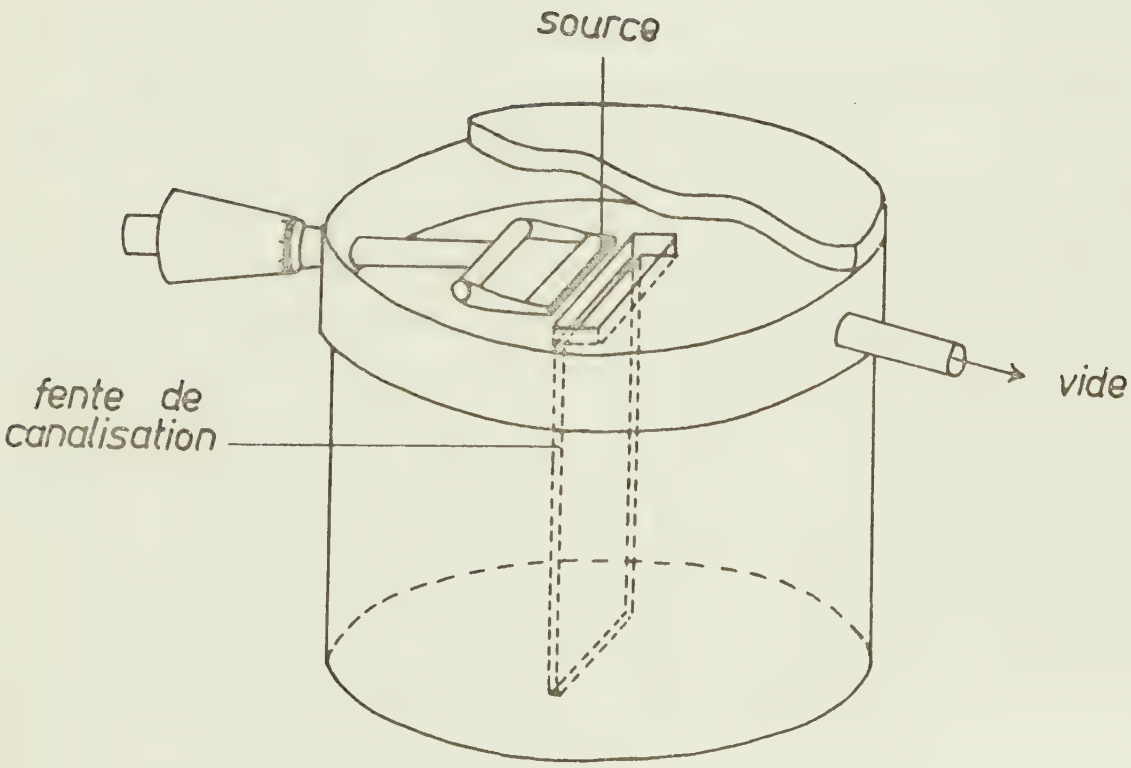


Fig. II-9

b - Coïncidences $\gamma - \gamma$

Les diodes détectrices α à barrière de surface ont, comme on le sait, une résolution médiocre, surtout dans le cas présent de coïncidences où l'angle solide doit être grand et le taux de comptage élevé. Ainsi, si les coïncidences $\alpha - \gamma$ permettent d'obtenir plus directement les intensités absolues des rayonnements, elles sont insuffisantes dans le cas de niveaux trop proches et d'intensités de rayonnements trop faibles et l'on doit faire appel aux coïncidences $\gamma - \gamma$.

La bonne résolution en énergie des coïncidences $\gamma - \gamma$ (Ge Li - Ge Li) nécessite l'accumulation des évènements dans un grand nombre de canaux. Ces expériences ont donc débuté depuis que la technique d'accumulation et de traitement des évènements par le calculateur IBM 360-50 a été mise au point à l'Institut de Physique Nucléaire d'Orsay et permet de réaliser des coïncidences multidimensionnelles de 2^{20} canaux et plus.

II - 3 . Mesures de vies moyennes par analyse du spectre γ émis par des atomes en vol.

On ne peut utiliser ici l'effet Doppler sur les rayonnements γ, employé fréquemment pour les mesures de périodes observées dans l'état final de réactions nucléaires, car, dans le cas du recul α, cet effet est faible ($\sim$1/1000), la vitesse de recul étant $\sim 3.10^7$ cm/s, et une telle méthode présenterait, dans l'état actuel de la technique, des difficultés insurmontables.

Aussi avons-nous mis au point une méthode qui permet d'étudier un grand nombre de niveaux simultanément et de les classer suivant leur période avec une précision suffisante pour faire un choix entre diverses hypothèses d'interprétation.

Le dispositif utilisé, représenté sur la figure II - 9, est placé au dessus d'un détecteur au germanium. La source est déposée sur une tranche de 1,3 x 20 mm placée parallèlement à la fente d'un canaliseur en cupro-tungstène de 6 cm d'épaisseur. Une vis micrométrique, avec passage Wilson, permet de déplacer la source perpendiculairement à la fente, l'ensemble du dispositif étant sous vide.

La loi d'émission des photons par les atomes en vol en fonction de la distance à la source dépend de la période du niveau concerné, ainsi en analysant les spectres γ obtenus pour différentes distances x de la source au canaliseur, on peut atteindre la période du niveau, à condition de tenir compte du spectre des vitesses des atomes de recul (chapître III).

CHAPITRE - III.

^{223}Ra, noyau à déformation moyenne

III - A Historique

Le thorium 227 existe dans la nature sous la forme d'une des substances dérivées de ^{235}U . Le rôle de cet isotope de l'uranium fut ignoré pendant longtemps, cependant que, dès le début du siècle (Debierne et Giesel), les premières quantités d'actinium, substance mère de ^{227}Th (ou radio-actinium), furent isolées à partir des minerais d'uranium. Le thorium 227 appartient ainsi au petit groupe de noyaux de Z élevé dont l'étude a donné naissance, bien avant la découverte des réactions nucléaires, à la spectrométrie nucléaire.

Aussi l'historique des recherches sur ce corps est-elle des plus longues. Dès 1908 furent observés par Hahn et Meitner les premiers spectres d'électrons de conversion appelés en ce temps là électrons de désintégration, car on ignorait alors le mécanisme de la conversion. Puis ces études reçurent une impulsion nouvelle avec la mise au point de la spectrométrie magnétique à 180° par Danysz en 1913. C'est en 1925 que le "radioactinium" servit à Meitner de test pour décider, sur la base de la différence d'énergie des raies de conversion K et L, si les transitions ont lieu avant ou après l'émission α, c'est-à-dire avant ou après la diminution de Z de deux unités.

Vers la même époque Frilley effectuait les premières mesures d'énergie γ en adaptant à ceux-ci la diffraction cristalline utilisée jusque là pour les rayons X ; il applique cette méthode à la famille de l'Actinium en 1940 [FR (40)] .

En 1929, Rosenblum résoud la difficile technique de l'analyse des énergies des particules α, en employant le principe de la

focalisation magnétique à 180°. Ainsi il put prouver la complexité du spectre α dans le cas du Th C (^{212}Bi). Irène Joliot-Curie examine alors les rayonnements α émis par le RdAc (^{227}Th) à l'aide d'une chambre Wilson, et observe deux groupes principaux de parcours. Il faut noter que des hétérogénéités de parcours avaient été soupçonnées déjà en 1914 (Paneth et coll.) mais avaient toujours été attribuées à la présence de radioéléments inconnus, émettant chacun un seul groupe de parcours. En 1932, Marie Curie et Rosenblum appliquent l'analyse magnétique au thorium 227 qui se révèle alors posséder la séquence de niveaux la plus compliquée connue. A l'heure actuelle on sait bien qu'il est naturel que le ^{223}Ra, noyau final de masse impaire, ait une densité de niveaux supérieure à celle de ses voisins pairs-pairs qui constituaient alors les seuls autres éléments radioactifs disponibles.

En 1937 puis en 1954, Rosenblum et Guillot RO (37), Frilley, Rosenblum, Valadares et Bouissières FR (54) ont repris cette étude, Le nombre des niveaux connus était alors de 15 et les transitions les plus intenses étaient caractérisées par leurs lignes de conversion dont l'interprétation théorique était devenue possible après les calculs de coefficients de conversion de Rose [RO (58)] et Sliv et Band [SL (61)].

En 1957, Pilger [PI (57)] reprend l'étude de ^{227}Th et de ses descendants avec les moyens alors disponibles : spectrométrie γ par NaI (Tl) et spectrométrie de conversion. Cette étude porte sur une trentaine de transitions, et donne un premier essai d'interprétation, basé sur le modèle de Nilsson, mettant en évidence une bande rotationnelle construite sur le niveau fondamental. D'autre part ses mesures de corrélations angulaires ainsi que celles de Bragança Gil, Foucher et Petit [BR (61)] ont permis

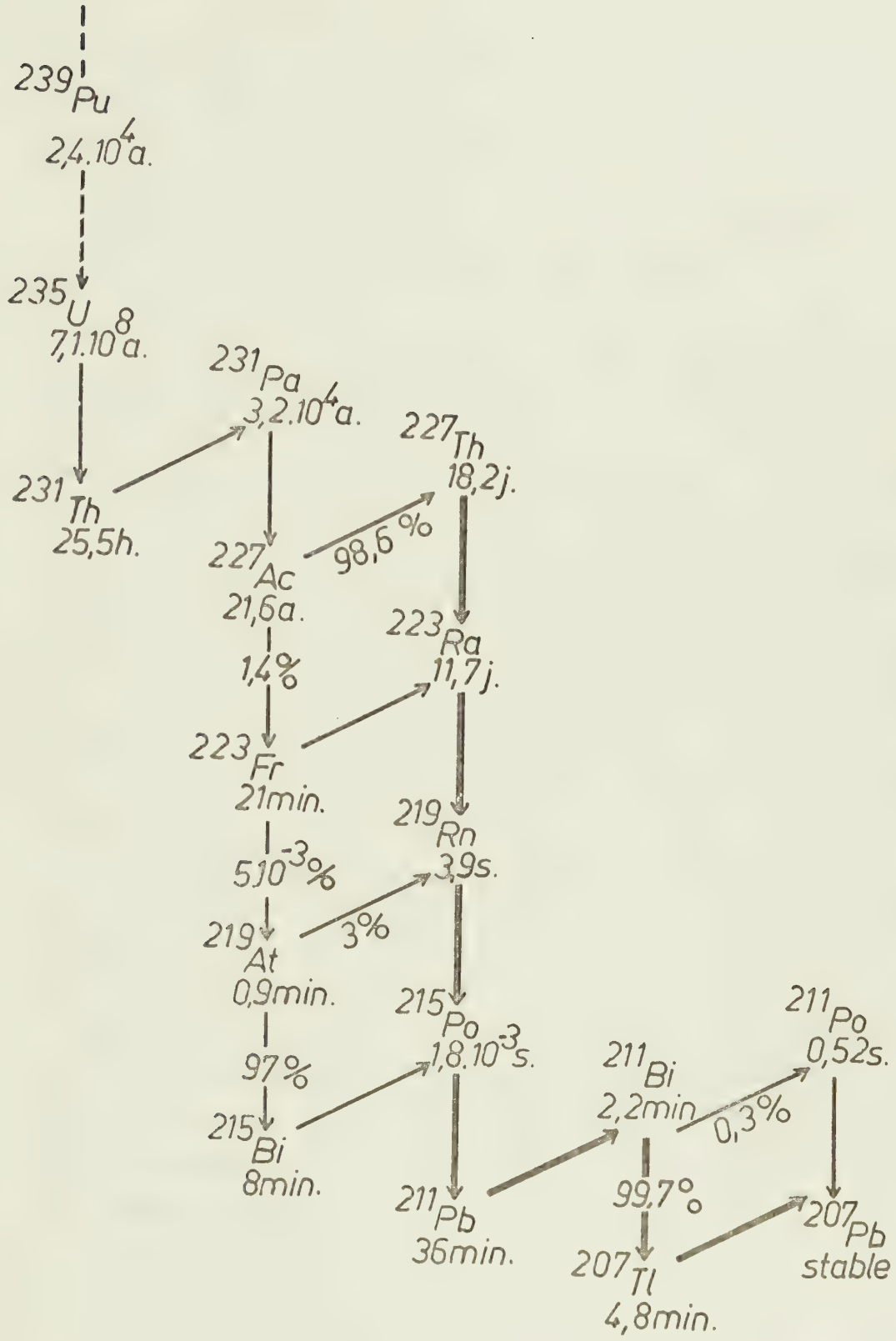
de fixer la séquence de spins possibles pour les niveaux de 286, 50,2 keV et le niveau fondamental.

Enfin, un grand renouveau d'intérêt est donné en 1964 à cette désintégration, lorsque Bastin, Leang et Walen [BA (64)] arrivent à fixer l'emplacement de 45 niveaux d'énergies inférieures à 1 MeV en reprenant la spectrométrie α de cet élément avec des techniques très améliorées : utilisation de sources minces, spectrographie magnétique α à grande dispersion et de haute qualité de champ magnétique.

Depuis cette date, nous nous sommes attachés [BR (66)a, $(66)_b$, $(67)_a$, $(67)_b$, $(68)_a$, $(68)_b$, WA(68), AG(69), PE(69), $BR(69)_a$, $BR(69)_b$] à étudier de la façon la plus complète possible le schéma des niveaux de ^{223}Ra. Au cours de ce travail fait avec des techniques constamment améliorées : scintillateur Na I (Tl) puis diodes Ge (Li), spectrométrie γ directe puis de coïncidences α-γ et γ-γ, spectrométrie (à 180°) des électrons de conversion avec enregistrement photographique puis par spectrographe $\pi\sqrt{2}$, mesures de vies moyennes des niveaux, il est apparu qu'un schéma aussi complexe ne pouvait être soumis à un essai d'interprétation avant qu'une masse de données expérimentales ne vienne étayer les hypothèses que l'on peut faire en termes de modèles.

En 1966, un premier essai d'interprétation utilisait les données obtenues à ce moment [VI (66)a, VI (66)b, BR (67)a.]

Ces trois dernières années, la possibilité de passer d'une résolution de 6 keV à 1 keV pour les mesures γ, l'introduction des techniques de coïncidences à grand nombre de canaux et les déterminations d'intensités absolues des raies de conversion ont changé l'ordre de grandeur du nombre des données expérimentales et c'est l'ensemble de ces résultats que nous présentons dans ce travail.



Famille radioactive de l'actinium 227.

Fig. III-1

En parallèle avec ces recherches, il faut citer une étude partielle des rayonnements γ émis par ^{227}Th, par Davidson et Connor [DA (68)] , ainsi que celle effectuée par Maria, Ythier, Polak et Wapstra [MA (67)], qui, en atteignant certains niveaux de ^{223}Ra par la voie ^{223}Fr (o, $\beta\gamma$), ont facilité certaines interprétations de rayonnements de faible intensité et de grande énergie dans la désintégration $^{227}Th \longrightarrow {}^{223}Ra$.

On peut dire qu'une difficulté permanente dans les recherches sur le radium 223est l'accumulation des dérivés. La figure III - 1 - rappelle la filiation de la famille de ^{235}U . La période la plus longue qui suit celle de ^{227}Th est due à ^{223}Ra, dont les dérivés sont rapidement à l'équilibre radioactif, en particulier le radon 219, très gênant,car il donne un fond général dans les expériences de spectrométrie de conversion. La croissance de ^{223}Ra est d'environ 1,2°/$_{oo}$ par heure. Une exigence constante dans les recherches décrites ci-dessous est que les rayonnements de ^{227}Th ne doivent pas être masqués par ceux des dérivés. En général, les expériences sont donc limitées dans le temps, et on ne peut profiter de la période de 18,9 jours de ^{227}Th.La durée pratique d'une expérience est la durée tolérable d'accumulation des dérivés, ce qui est variable avec le type d'expériences réalisées et peut descendre jusqu'à 30 minutes. Aussi avons-nous dû recourir soit à des renouvellements de sources, soit à des méthodes de purification continue en cours de mesure, tout en tenant compte des rayonnements des substances dérivées dont les schémas ont été étudiés parallèlement (en traits renforcés sur la figure III- 2 -) [BR (65), (67)b, (68)] , mais ne figurent pas dans ce travail.

III - B. ETUDE EXPERIMENTALE

III - B - 1 - Préparation des sources

Je suis très reconnaissante envers Monsieur WALEN qui a préparé les sources dont la haute qualité a permis de réaliser ce travail.

La substance mère a été une solution contenant initialement 15 mCi de ^{227}Ac avec des impuretés diverses. les sources utilisées au cours de ce travail ont été très variées et seront décrites au fur et à mesure. La partie commune à toutes les préparations est l'obtention d'une solution pure de ^{227}Th.
La suite des opérations conventionnelles a toujours été :

- Mise à sec de la solution mère, redissolution en solution nitrique 0,1 N.
- Complexation de ^{227}Th par deux agitations pendant 10 minutes avec des volumes égaux d'une solution de thenoyltrifluoroacétone (TTA) 4M dans le xylène.
- Lavage du complexe en solution de xylène par HNO_3, 0,1 N à cinq reprises.
- Extraction en retour par agitation avec 0,1 cc de HNO_3, 2N
- Lavage de ce retour par :
  - solution de TTA dans le xylène
    xylène (3 fois)
    éther isopropylique (2 fois)
    chloroforme (2 fois)
- Chauffage pour éliminer les traces de solvants organiques volatils.

A partir de là, des procédés divers interviennent pour les cas particuliers. Tous les réactifs utilisés sont "pour analyse" et redistillés en récipients de quartz, sauf le TTA qui est sublimé à 30°, condensé à - 10° et conservé en congélateur.

Le rendement global d'une opération est de 60 à 70%. La solution mère est reconstituée en fin d'extraction par une mise à sec suivie d'une remise en solution HNO_3, 4N pour stockage.

III - B - 2 Spectrométrie γ directe

C'est ici que l'influence des dérivés est particulièrement nocive, car leur spectre γ est partout mêlé à celui que l'on veut étudier et la sensibilité des mesures avec diodes Ge (Li) a permis de descendre à des intensités de rayonnements de l'ordre de 10^{-7} par désintégration.

Spectre γ de ^{223}Ra et de ses dérivés

Ce spectre a été obtenu par un procédé qui différencie entre eux les dérivés successifs : la source était déposée sur une feuille de platine que l'on chauffait ensuite à 1000° en la balayant par un courant d'air. Le radium n'est pas volatil à cette température, tandis que les substances dérivées (Po, Pb, Bi) le sont à des degrés différents faciles à prévoir. Une fraction importante des émetteurs α dérivés reste d'ailleurs fixée par recul dans le platine, mais par cette méthode, en comparant les spectres avec source froide (dérivés à l'équilibre) et source chauffée, on arrive à attribuer la plupart des rayonnements aux différents dérivés. Pour plus de détails, on peut se reporter à ce travail [BR (68)] qui ne peut être donné ici in extenso. Dans certaines expériences, la connaissance de ce spectre a été indispensable pour pouvoir, le cas échéant, opérer les soustractions nécessaires.

Le souci de minimiser l'importance des dérivés a conduit aux différents procédés qui suivent.

a) Procédé par renouvellement des sources

Le thorium 227 complexé par le thenoyltrifluoroacétone (TTA) en solution 4M dans le xylène, est lavé par HNO_3, 0,1N juste avant chaque prélèvement pour les mesures. Ce type de source est remplacé toutes les demi-heures. Une telle méthode, si elle donne un taux moyen de dérivés inférieur à 1 °/₀₀, se prête cependant mal à l'obtention de statistiques élevées. Nous avons eu recours à un procédé voisin pour obtenir les intensités absolues des raies les plus importantes, en évaporant la solution complexée de thorium, afin de pouvoir la mesurer au préalable par son rayonnement α en intensité absolue.

b) Procédés par purification continue

- Région d'énergie 0 - 450 keV

Cette gamme d'énergie a été examinée sans filtration (0,6 mm Be, diode Ge (Li) irradiée par la tranche) ou avec un filtre (1 mm Pb + 2 mm Cu + 2 mm Al). Dans ce cas les sources restent assez faibles, de 20 à 100 μ Ci. Le thorium est extrait par le TTA en solution benzénique (le xylène, préférable du point de vue de sa pureté et de sa stabilité, est trop visqueux pour permettre un lavage efficace). Le complexe dans le benzène est soumis à un lavage continu (fig. III - 2 -) par une solution HNO_3, 0,02N introduite goutte à goutte et avec agitation. Le niveau de la solution est maintenu constant par aspiration dans le deuxième compartiment, le volume de la solution benzénique étant réajusté toutes les quatre heures car la solubilité du benzène dans l'eau n'est pas négligeable.

Ce procédé donne lieu à des pertes particulièrement faibles et permet d'accumuler les résultats pendant plusieurs jours. Cependant, la purification moyenne n'excède pas 2 à 3 °/₀₀ par suite d'une certaine fixation du radium sur les parois de verre.

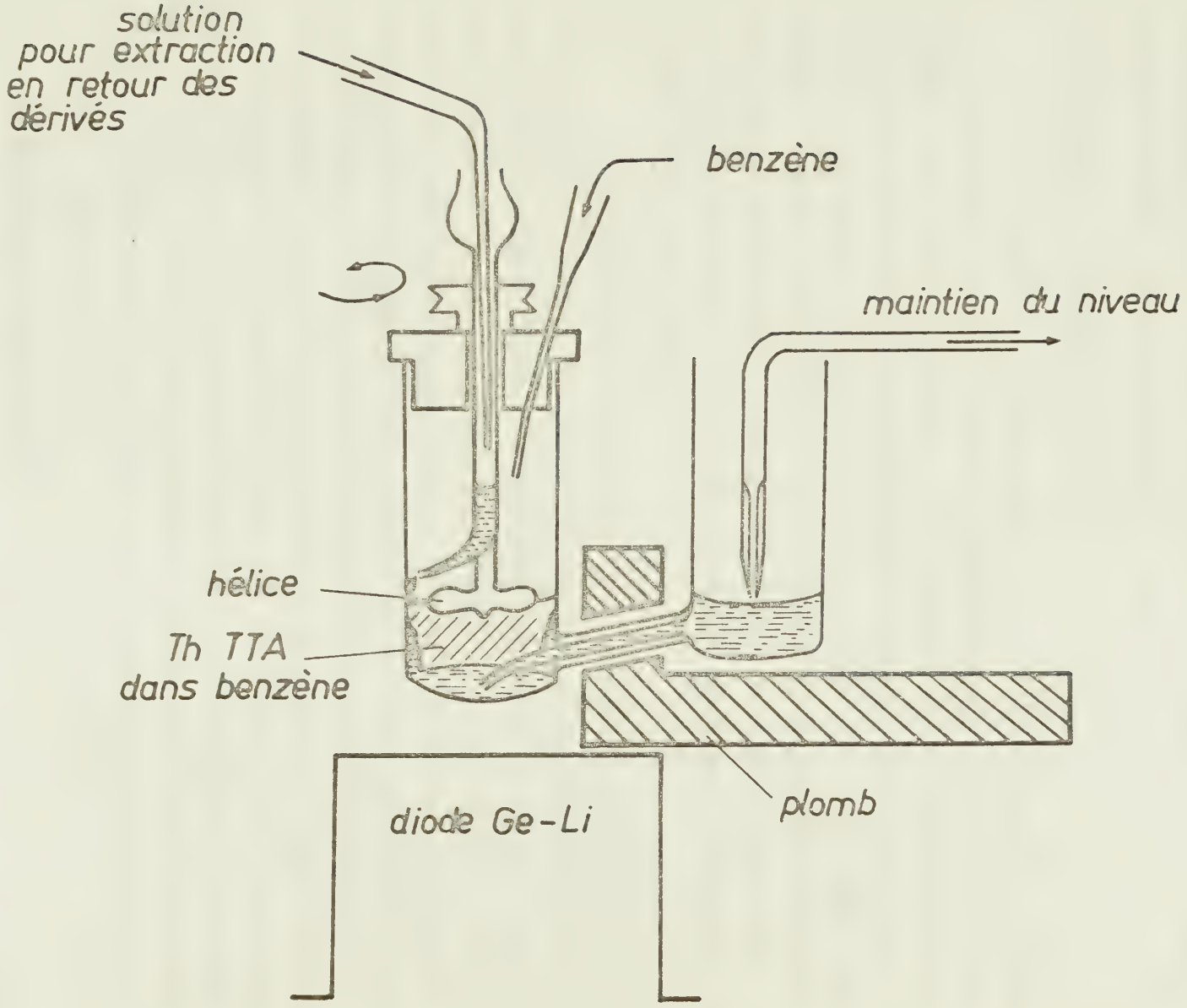

solution
pour extraction
en retour des
dérivés
benzène
maintien du niveau
hélice
Th TTA
dans benzène
plomb
diode Ge-Li

Fig.III-2

Là où les dérivés pouvaient obscurcir le spectre de ^{227}Th celui-ci a été corrigé ensuite par soustraction du spectre des dérivés (^{223}Ra + ^{219}Rn + ^{215}Po) et (^{211}Pb + ^{211}Bi) jusqu'à annulation des lignes intenses de ceux-ci.

- Région d'énergie > 440 keV

L'étude des rayonnements de faible intensité nécessite la suppression presque complète des rayonnements très intenses, situés entre 200 et 330 keV, qui surchargent l'électronique et ne permettent pas une vitesse d'acquisition suffisante pour le spectre d'énergies plus élevées. Le filtre utilisé a été à cet effet 12 mmPb + 5 mm Cu + 5 mm Al. Corrélativement les sources étaient plus intenses : 5 à 10 m Ci et le procédé précédent n'est plus possible car le TTA se décompose trop rapidement sous l'effet du rayonnement.

Le thorium a donc été fixé sur une colonne de résine Dowex 50 de 15 cm X 3 mm, enroulée en spirale, disposée au-dessus de la diode, dans le filtre, et chauffée dans un bain d'huile à 80°. On peut atteindre ainsi un degré de purification élevé, mais au prix d'une élution notable du thorium lui-même. La période d'élution du thorium est de l'ordre de 7^H pour une purification à 10^{-4} et de l'ordre de 20^H pour une purification de $5.\ 10^{-4}$. Ceci nécessite, pour une accumulation de 5 jours, des récupérations avec recyclage du produit. L'élution avec HNO_3 - 3N (purification 10^{-4}) a permis de constater que tout le rayonnement de 445 keV observé était dû à la désintégration $^{223}Ra \longrightarrow {}^{219}Rn$. L'accumulation principale (120 H) a été faite avec élution à 4N (purification 10^{-3} et 4 recyclages).

- Mesures avec canaliseur

Dans certaines régions d'énergie, la densité de lignes est très élevée et des lignes intenses alternent avec des lignes

faibles. Quelques spectres ont été relevés avec une source sévèrement canalisée (canaliseur en cupro-tungstène de densité superficielle 100 g/cm^2) où la détection se fait seulement par le centre de la zone intrinsèque de la diode. L'échappement Compton étant notablement diminué, le pic d'énergie totale est très symétrique, ce qui facilite l'analyse des pics faibles entourés de pics intenses.

Résultats

Les résultats expérimentaux sont reproduits sur les figures III - 3 - 4 - 5 - 6 - 7 - 8.
Les figures III-3-4 et 5 donnent le spectre γ de 0 à 230 keV relevé avec une diode Ge - Li de résolution 0,9 keV à 100 keV. Les figures suivantes ont été obtenues avec la même diode lorsque celle-ci avait une résolution 1,7 keV à 100 keV : figure III - 6 spectre de 230 à 450 keV, avec filtre de 1 mm Pb - figure III - 7 , spectre de 440 à 780 keV et figure III - 8 de 780 à 1100 keV, avec filtre de 12 mm Pb. Il faut noter que le spectre de la figure III - 8 à statistique pauvre, malgré une accumulation de 800 mCi - heure, a été lissé.

Le tableau III - a qui suit résume les données ainsi obtenues, Nous nous abstenons de donner dans ce tableau les interprétations, car la suite montrera en effet que de nombreuses lignes sont complexes, que bien des transitions sont trop converties pour être visibles par spectrométrie γ directe et que l'attribution d'une transition à un niveau n'est possible qu'en considérant simultanément les spectres α, γ et de conversion interne, ainsi que les résultats de coïncidences multidimensionnelles.

Les intensités absolues résultent d'un étalonnage de la jonction, d'une part en valeur relative au moyen d'émetteurs γ

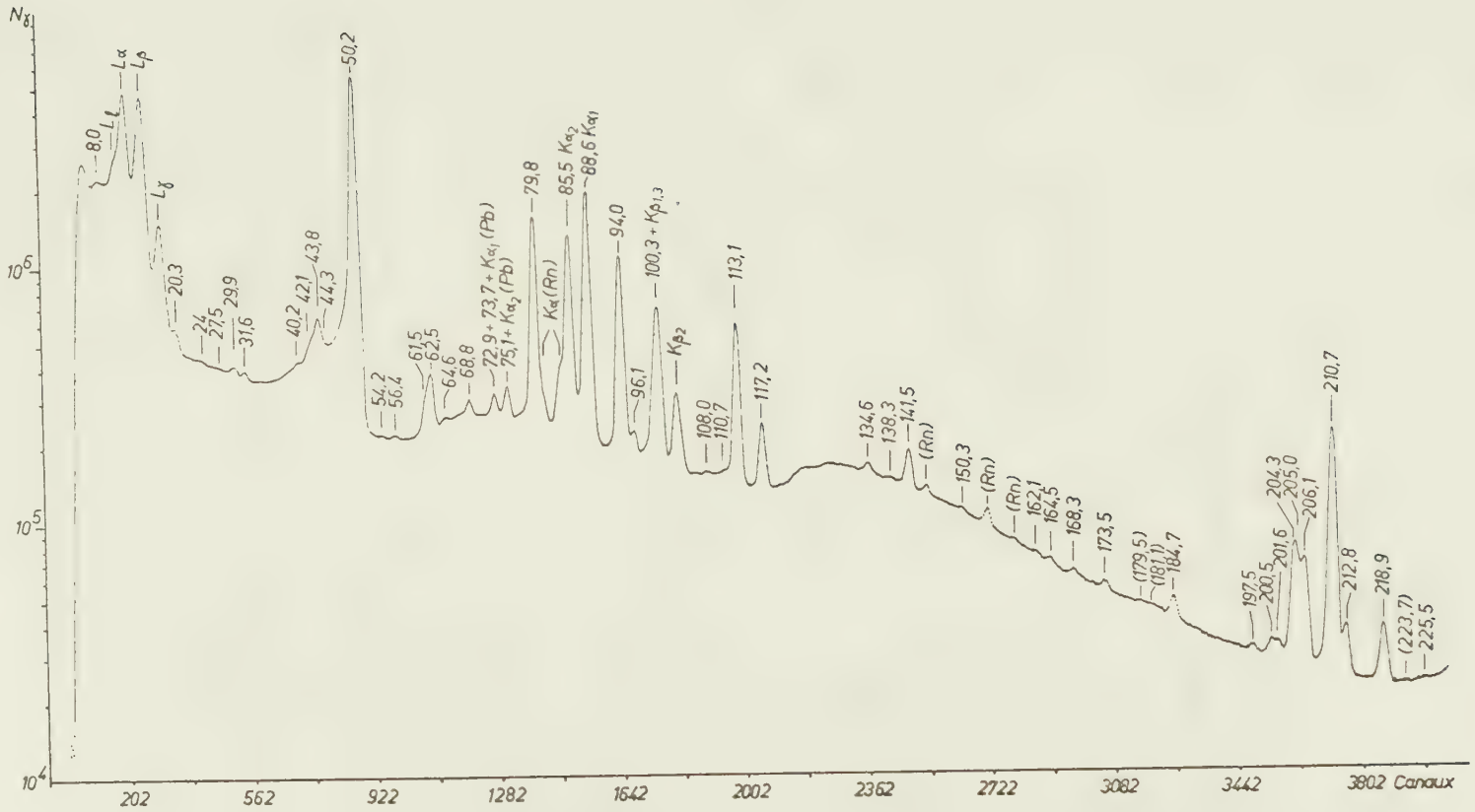

N_δ
10^6
10^5
10^4
8,0
L_ℓ
L_α
L_β
L_γ
20,3
24
27,5
29,9
31,6
40,2
42,1
43,8
44,3
50,2
54,2
56,4
61,5
62,5
64,6
68,8
72,9 + 73,7 + K_{α_1} (Pb)
75,1 + K_{α_2} (Pb)
79,8
K_α (Rn)
85,5 K_{α_2}
88,6 K_{α_1}
94,0
96,1
100,3 + $K_{\beta_{1,3}}$
K_{β_2}
108,0
110,7
113,1
117,2
134,6
138,3
141,5
(Rn)
150,3
(Rn)
(Rn)
162,1
164,5
168,3
173,5
(179,5)
(181,1)
184,7
197,5
200,5
201,6
204,3
205,0
206,1
210,7
212,8
218,9
(223,7)
225,5
202
562
922
1282
1642
2002
2362
2722
3082
3442
3802 Canaux

Fig. III-3

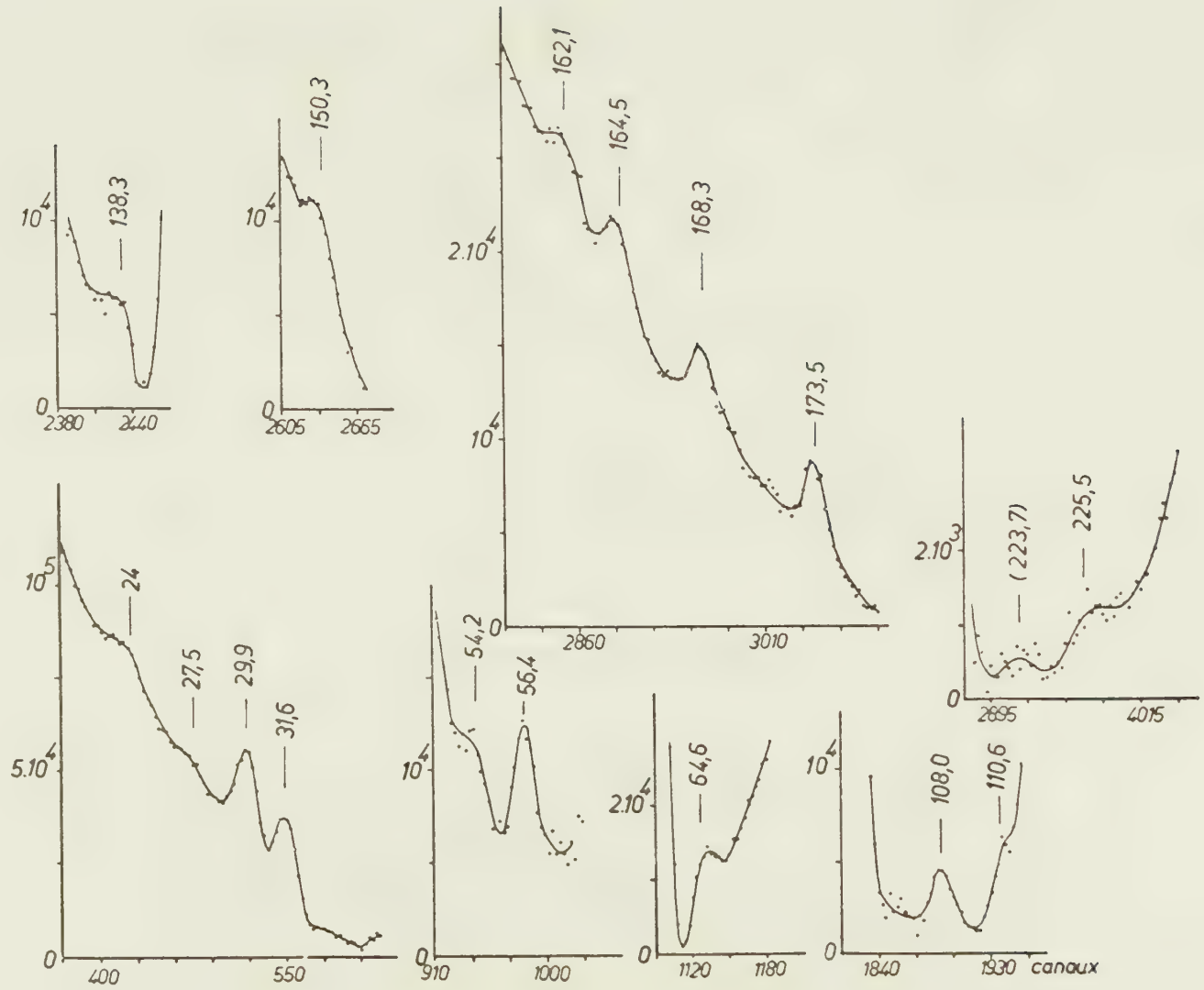
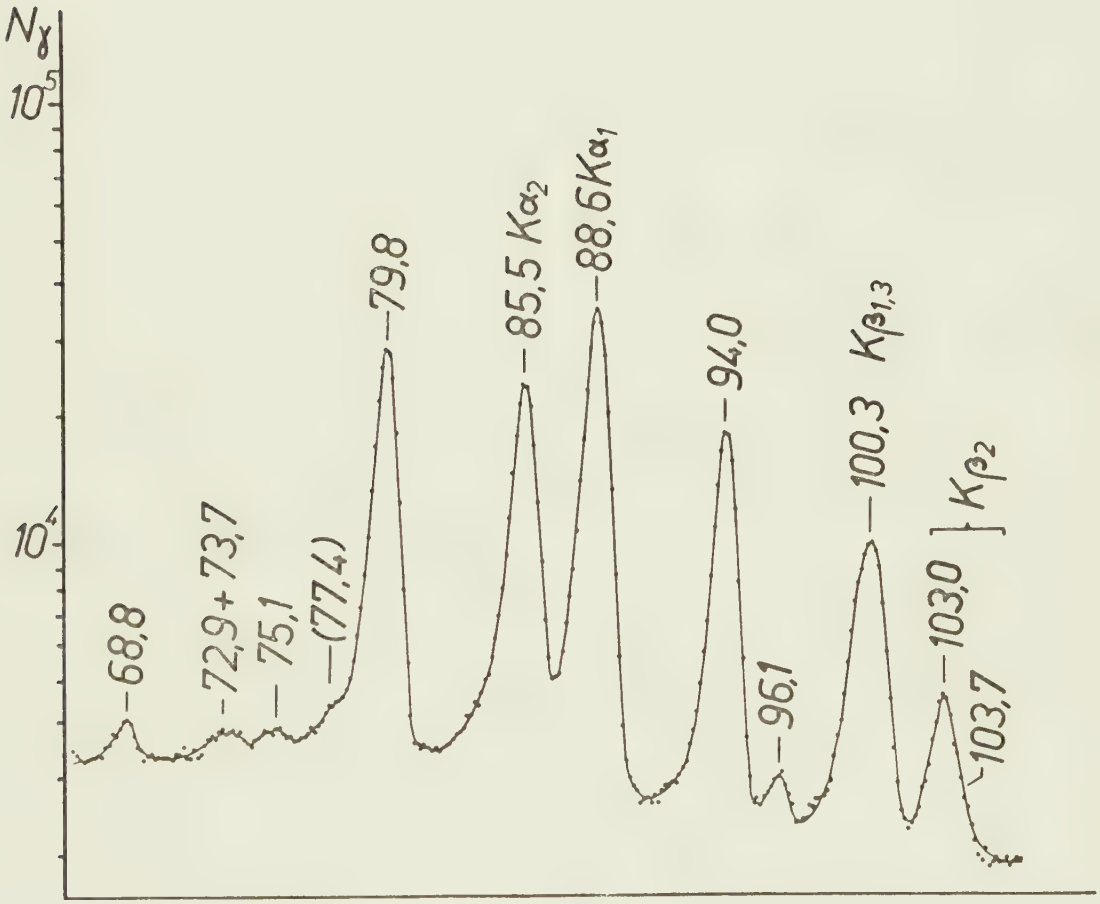

138,3
150,3
162,1
164,5
168,3
173,5
24
27,5
29,9
31,6
54,2
56,4
64,6
108,0
110,6
(223,7)
225,5
canaux

Fig. III-4



(sources renouvelées toutes les 30 minutes.)

Fig.III-5

Nγ
10^6
10^5
10^4
234,9
236,0
246,2
250,2 + 250,4
252,6
254,7
256,3
263,0
268
273,0
279,8
281,4
285,5
286,2
292,6
296,6
300,0
304,5
308,4
312,7
314,9
319,2
(326)
329,9
334,5
342,5
346,5
350,5
352,7
362,6
369
371
375
(382)
383,6
(399)
402,6
415,2
432,4
500
0
1000
0
1000
0
1000
1500
Canaux

Fig. III-6

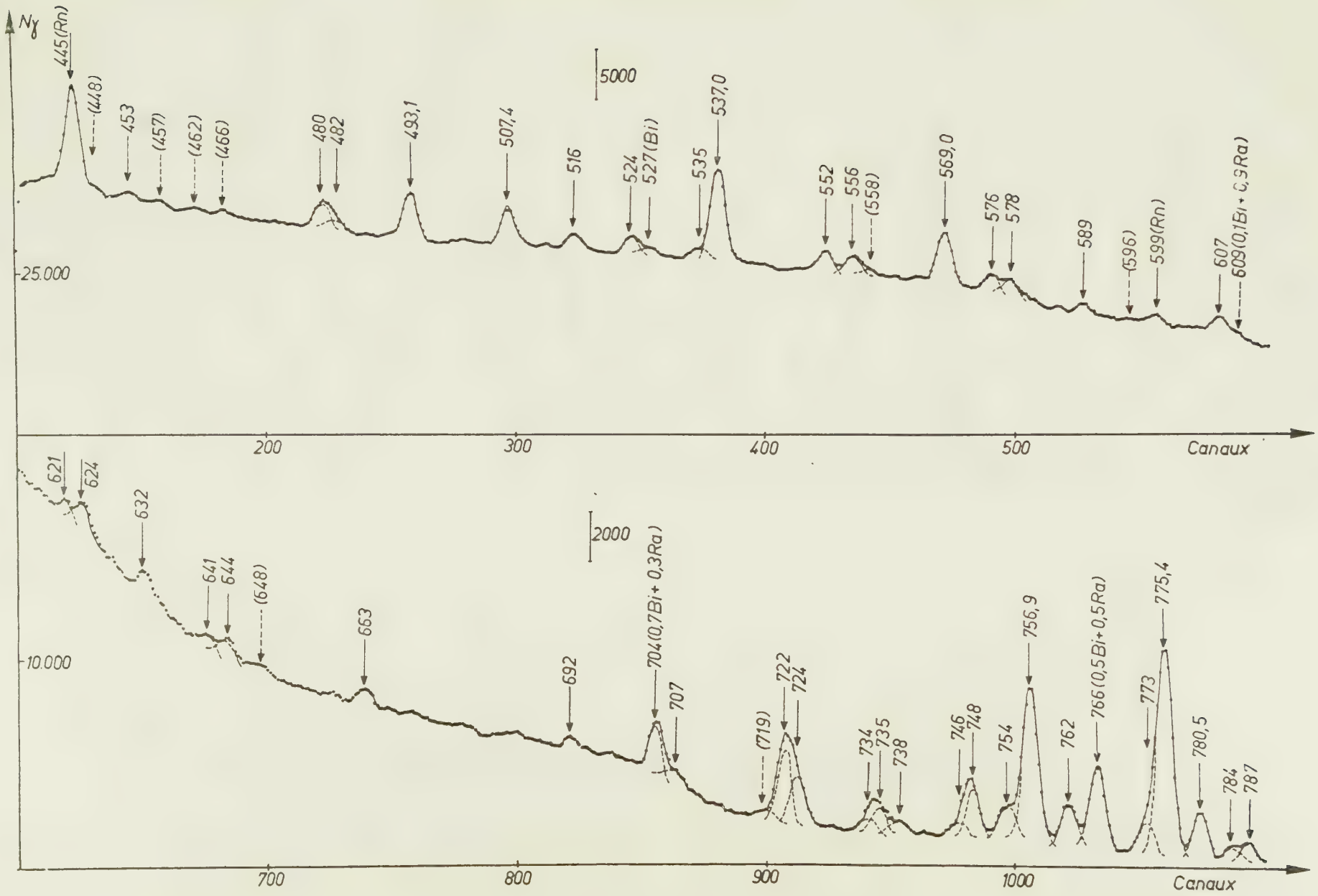

Nγ
445(Rn)
(448)
453
(457)
(462)
(466)
480
482
493,1
507,4
516
524
527(Bi)
535
537,0
552
556
(558)
569,0
576
578
589
(596)
599(Rn)
607
609(0,1Bi + 0,3Ra)
5000
25.000
200
300
400
500
Canaux
621
624
632
641
644
(648)
663
692
704(0,7Bi + 0,3Ra)
707
(719)
722
724
734
735
738
746
748
754
756,9
762
766(0,5Bi+0,5Ra)
773
775,4
780,5
784
787
2000
10.000
700
800
900
1000
Canaux

Fig.III-7

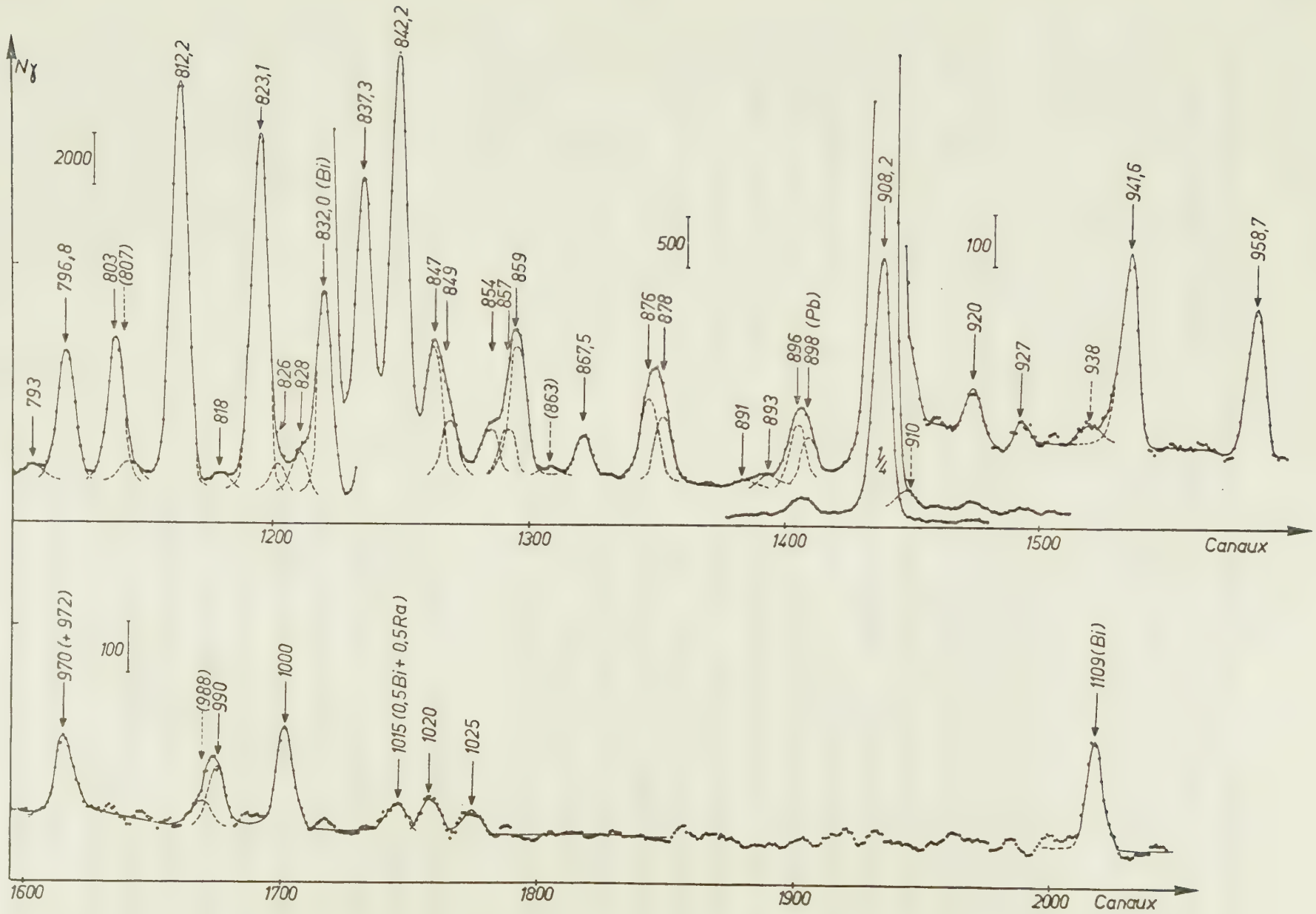

Nγ
2000
500
100
1/4
793
796,8
803
(807)
812,2
818
823,1
826
828
832,0 (Bi)
837,3
842,2
847
849
854
857
859
(863)
867,5
876
878
891
893
896
898 (Pb)
908,2
910
920
927
938
941,6
958,7
1200
1300
1400
1500
Canaux
970 (+ 972)
(988)
990
1000
1015 (0,5 Bi + 0,5 Ra)
1020
1025
1109 (Bi)
1600
1700
1800
1900
2000
Canaux

Fig. III-8

conventionnels, d'autre part en valeur absolue au moyen d'émetteurs α (transitions $2+ \rightarrow 0+$ d'émetteurs pairs-pairs, rayonnements X_L, ainsi que 26,2 et 59,5 keV dans ^{237}Np). On a disposé ainsi d'une courbe unique de 15 keV à 1 MeV, en valeur absolue pour les différentes géométries utilisées.

Jusqu'à 400 keV, ces résultats ont été comparés à ceux de Davidson et Connor [DA (68)] . Si l'accord en intensité est bon pour les lignes principales de la partie des moyennes énergies, il existe de gros désaccords pour les basses énergies (facteurs supérieurs à 10 pour 30 keV). En particulier, il faut noter que nous avons attribué une intensité de $8,5.\ 10^{-2}$ par désintégration au rayonnement de (49,9 + 50,2) keV (intensité deux fois plus grande que celle donnée par Davidson). Pourtant cette valeur est en bon accord avec celle, mesurée par une méthode absolue, par Peghaire [PE (69)] qui donne $I\gamma = (8,4 \pm 0,6)\ 10^{-2}$. La question de l'étalonnage en valeur absolue du spectre γ de basses énergies est très importante comme nous le verrons plus loin pour les spectres de coïncidences et aussi pour le bon équilibre des bilans d'intensités de toute la partie basse énergie du schéma de niveaux.

Au dessus de 450 keV, l'autre source d'information est la désintégration $^{223}Fr \xrightarrow{\beta} {}^{223}Ra$, [MA (67)] , qui alimente un certain nombre des mêmes niveaux que ^{227}Th. Les règles de sélection et les effets de barrière font que les alimentations sont très différentes dans les deux cas. A plusieurs reprises il n'a été possible d'arriver à un accord entre ces deux types d'expérience qu'en distribuant un pic entre deux transitions possibles et en se servant du fait que les rayonnements qui ont pour origine un niveau donné doivent rester dans des proportions qui ne dépendent pas du type d'alimentation α ou β. Ceci a mené à mettre sous la forme d'un système d'équations linéaires simultanées toutes les intensités de rayonnements ayant, soit une origine commune, soit des énergies identiques, ceci pour les deux voies d'alimentation α et β. Ces cas spécifiques sont indiqués en note dans le tableau a

TABLEAU III - a p. 32

hν	Δhν	I	ΔI%
6	-	-	-(a)
8,0	0,2	-	-(b)
20,3	0,2	6(-3)	30
24,0(*)	0,4	5(-4)	30(b)
27,5	0,4	2(-4)	30
29,9*	0,15	1(-3)	25
31,6	0,1	8(-4)	25
40,2	0,3	2(-4)	30
42,1	0,4	4(-4)	20
43,8	0,2	2,3(-4)	15
44,3*	0,3	-	
50,15	0,1	8,5(-2)	7(c)
54,2(*)	0,4	8(-5)	30
56,4*	0,2	1,5(-4)	25
61,5	0,2	9(-4)	20
62,5*	0,2	2(-3)	15
64,6(*)	0,3	1,6(-4)	30
68,8*	0,1	5,5(-4)	15
72,9	0,3	-	-(b)
73,7	0,3	-	-(b)
75,1	0,2	-	-(b)
77,4	0,4	∿8(-5)	
79,8	0,1	2(-2)	10
Kα2	(85,5)	1,7(-2)	10
Kα1	(88,6)	2,7(-2)	10
94,0*	0,1	1,4(-2)	10
96,1	0,15	6(-4)	15
Kβ1,3 + 100,3	(100,2)	8(-3)	10
Kβ2,2'	(103,0)	2,4(-3)	10
108,0(*)	0,2	1(-4)	35
110,7	0,25	5(-4)	25
113,1*	0,1	7,1(-3)	10
117,2*	0,1	1,8(-3)	10
134,6	0,2	3(-4)	20
138,3	0,3	2,4(-5)	30
141,5*	0,15	1,3(-3)	15
150,3	0,4	5(-5)	30
162,1	0,3	8(-5)	30
164,5(*)	0,4	∿1,3(-4)	
168,3	0,3	1,3(-4)	30
173,5	0,3	1,6(-4)	25
(179,5	0,5	∿2,5(-5))	
(181,1	0,5	∿2,5(-5))	
184,7*	0,2	4(-4)	17
197,5	0,3	1(-4)	27
200,5	0,2	1,8(-4)	20
201,6	0,2	1,8(-4)	20
204,3	0,2	2(-3)	15
205,0	0,2	1,1(-3)	15
206,1	0,2	2,1(-3)	15
210,7	0,1	1,1(-2)	10
212,8	0,1	8(-4)	15
218,9*	0,1	1(-3)	12
(223,7		∿ 2(-5))	
225,5*	0,3	5(-5)	30
234,9 + 236,0	0,1 0,1	1,3(-1)	7(c)
246,2	0,2	1(-4)	35
250,3*	0,2	5,6(-3)	20

TABLEAU III - a (suite)

hν	Δhν	I	ΔI%
252,6	0,3	1(-3)	25
254,7 + 256,3	0,2 / 0,1	8(-2)	7(c)
262,8	0,2	1(-3)	12
268 *	0,4	-	-(d)
273,0	0,2	5(-3)	15
279,7	0,3	6(-4)	20
281,4 *	0,2	1,6(-3)	25
286,2 *	0,15	1,6(-2)	7(c)
292,5	0,2	7(-4)	20
296,6	0,2	4,9(-3)	13
300,0 *	0,2	2,2(-2)	10
304,5	0,2	1,0(-2)	10
308,4	0,3	1,4(-4)	25
312,7	0,3	5(-3)	20
314,9*	0,3	4,7(-3)	20
319,2 *	0,3	3,4(-4)	20
325,5 *	0,4	∿ 1,5(-4)	
329,9	0,2	2,8(-2)	10
334,5	0,2	1,1(-2)	10
342,5	0,2	4,2(-3)	15
346,5	0,4	1(-4)	35
350,5	0,2	1,2(-3)	15
352,7	0,3	1,3(-4)	30
362,6	0,2	5(-5)	20
369,4	0,4	6(-5)	25
370,9	0,4	7(-5)	25
374,5	1	1,4(-5)	35
382,5	0,5	∿ 6(-5)	
383,6	0,2	5(-4)	20

hν	Δhν	I	ΔI%
399	1,5	∿ 2(-5)	
402,6	0,3	1,2(-4)	30
415,2	0,3	1,7(-5)	25
432,4	0,2	5(-5)	20
(442,5	1	⩽ 6(-7))	
445	-	< 1(-5)	
448	0,6	∿ 1,5(-6)	
452,7	0,6	∿ 1(-6)	
457,5	1	∿ 7(-7)	
(462	1	∿ 5(-7))	
(466,5	1	∿ 5(-7))	
480	1	3(-6)	30
482	1	1,4(-6)	30
493,1	0,2	5,5(-6)	15
507,4	0,3	4(-6)	20
516,4	0,3	1,8(-6)	20
524,3	0,4	1,5(-6)	20
535	1,2	1(-6)	30
537,0	0,3	1,1(-5)	15
552,4	0,5	2,3(-6)	20
556,5	0,5	2,2(-6)	20
569,0	0,3	6(-6)	15
575,7	0,7	1,3(-6)	20
578,5	0,7	1,3(-6)	20
589	0,6	6(-7)	25
(596	1	∿ 1(-7))	
607,5	0,4	1,8(-6)	20
621,4	0,5	6(-7)	25
623,8	0,5	1,6(-6)	25
632,3	0,7	1,4(-6)	20

TABLEAU III - a (suite) p. 32

hν	Δhν	I	ΔI%	hν	Δhν	I	ΔI%
641,0	0,5	2(-7)	30	828,5*	0,5	1,2(-6)	40
644,2	0,5	5(-7)	30	837,3	0,3	4(-6)	10
(648,5	0,5	2(-7))	30	842,2	0,3	6(-6)	10
663,1	0,5	6(-7)	30	846,7	0,5	1,5(-6)	20
692,0	0,7	4(-7)	30	848,7	0,5	6(-7)	30
(704,3	0,5	8(-7))	20	854,3	0,5	7(-7)	20
707,2	0,7	4(-7)	30	857,3	0,7	6(-7)	30
(718,5	1	3(-7))	40	858,8	0,3	2,4(-6)	15
722,1	0,6	3,8(-6)	30	(863	1	2(-7))	40
723,6	0,6	2,7(-6)	40	867,5	0,5	7(-7)	20
734,4	0,5	1(-6)	40	876,2	0,4	1,6(-6)	30
735,5	0,5	1,6(-6)	30	878,2	0,4	1,2(-6)	30
738,4	1	7(-7)	25	891	1	2(-7)	30
746,4	0,7	1(-6)	40	893	1	1,3(-7)	30
748,5	0,5	3(-6)	20	896,1	0,5	1,1(-6)	25
754,0*	0,6	2(-6)	25	908,2	0,2	2,1(-5)	15
756,9*	0,2	1(-5)	20	910	1	1,5(-7)	40
762,2	0,5	2,6(-6)	20	920	0,5	1,2(-7)	25
766,3	0,5	3(-6)	20	927	1	7(-8)	30
773	0,8	1,3(-6)	40	938	0,8	1(-7)	40
775,3	0,2	1,5(-5)	10	941,6	0,3	7,2(-7)	15
780,5	0,3	3,2(-6)	20	958,7	0,3	6,2(-7)	20
784,2	0,5	1(-6)	25	970,0	0,4	3(-7)	20
787,4*	0,5	1,3(-6)	25	(971,7	1	∿ 1(-7))	50
792,6*	0,6	7(-7)	25	(988	1	∿ 1,5(-7))	
796,8	0,2	8(-6)	10	990	0,7	3,5(-7)	25
803,5	0,2	9,7(-6)	10	(995	1	∿ 7(-8))	
(807,5		∿ 5(-7))		999,8	0,5	3(-7)	25
812,2	0,2	2,7(-5)	10	1015,2	0,7	1,5(-7)	25
818,0*	1	1,3(-6)	30	1020	1	2(-7)	30
823,1	0,2	2,5(-5)	10	1025	1	1,5(-7)	30
826,0	1	2(-6)	30				

Notes du Tableau III-a. p. 32

(a) rayonnement observé par Frilley en diffraction cristalline.

(b) ces rayonnements peuvent être sujets à des erreurs importantes à cause de la présence éventuelle de rayonnements X_K, soit des descendants, soit des matériaux qui entourent la diode.

(c) ces rayonnements ont été pris par la suite comme étalons d'intensité après avoir tenu compte de leur complexité par d'autres moyens : e^-, $\gamma\gamma$, $\alpha\gamma$.

(d) l'intensité de ce rayonnement sera donnée par les coïncidences γ-γ, car il est trop voisin des rayonnements intenses de 269 et 271 keV des descendants et une soustraction de ces derniers entraîne une trop grande erreur.

* Ces raies sont complexes. De 0 à 440 keV, la décomposition sera essentiellement basée sur les spectres de coïncidences. Aux énergies plus élevées, les rapports des intensités d'alimentation des niveaux par voie α et β interviendront pour déterminer les composantes reportées sur la figure III - 26.

III - B - 3 Spectrométrie des électrons de conversion

La grande densité de lignes du spectre γ se répercute sur le spectre d'électrons de conversion qui présente une complexité encore plus grande : non seulement chaque transition donne lieu à plusieurs raies d'électrons, mais encore, dans la partie des basses énergies surtout, de nombreuses transitions, trop converties pour être perceptibles dans les spectres γ, prennent une grande importance dans les spectres d'électrons de conversion.

Spectrographie à focalisation semi-circulaire et détection photographique.

Nous ne reviendrons pas sur les détails de la méthode qui ont été donnés au chapître II § I , sauf en ce qui concerne les sources et les poses photographiques.

En tout 11 sources ont été préparées, d'intensités variant de 0,1 à 2mCi, suivant le compromis adopté entre intensité et propreté. Toutes ont été obtenues par volatilisation de l'oxyde de ^{227}Th.

Environ 130 spectres ont été enregistrés, et ce nombre élevé s'explique par :

- la gamme d'énergie explorée (0 à 350 keV), ce qui nécessite l'utilisation de plusieurs spectrographes possédant des champs de 30, 60, 100 et 150 gauss.
- la faible gamme d'intensité pour laquelle une émulsion reste suffisamment linéaire, alors que dans ce spectre les intensités photographiques des lignes observées varient dans des rapports pouvant aller jusqu'à 3000.
- la nécessité d'utiliser la préaccélération de 10 à 15 kV pour les faibles énergies.
- la variété des supports de source employés :

- pour la région des basses énergies, supports très minces (feuilles d'oxyde d'aluminium) qui donnent un fond photographique général moindre et une meilleure résolution pour les lignes, mais au prix d'une efficacité plus faible.
- pour la région des moyennes énergies, sources sur "tranche" de 2/10 mm d'aluminium, donnant des lignes fines mais avec plus de "queue" vers les basses énergies.
- ces sources étaient légèrement recouvertes ou non d'une dizaine de $\mu g / cm^2$ d'aluminium si l'on voulait supprimer les reculs, donc les bandes Doppler, qui, dans certaines régions du spectre de basse énergie, peuvent masquer des lignes faibles.

- Enfin, les poses étant rarement courtes, il y a accumulation rapide des dérivés, dont il a fallu tenir compte au moyen de poses successives permettant de contrôler croissance et décroissance des lignes.

La figure III - 9 montre des exemples de spectres obtenus :

a) B $\sim$ 30 gauss, source nue sur support mince d'oxyde d'aluminium : on peut remarquer l'épaule Doppler du côté hautes énergies des raies.

b) Même partie du spectre, avec B $\sim$ 60 gauss et source également sur support mince, mais recouverte d'environ 10 $\mu g/cm^2$ d'aluminium afin de supprimer la bande Doppler.

c) B $\sim$ 150 gauss, source intense ($\sim$ 1 mCi) sur tranche d'aluminium de 2/10 mm et recouverte d'environ 20 $\mu g/cm^2$ d'aluminium.

Le tableau III - b donne la liste des raies observées (plus de 300) avec leur énergie et leur attribution. Etant donnée la complexité de nombreuses lignes, il serait trop long de donner ici les intensités de toutes les raies et la manière souvent

Fig. III-9 $^{227}Th(RdAc) \longrightarrow {}^{223}Ra(AcX)$

compliquée de les obtenir en s'aidant des intensités γ et de coïncidences. Nous donnerons seulement dans la discussion du schéma, niveau par niveau et transition par transition, les intensités des raies ayant servi à déterminer les multipolarités (raies K et L) (§ B-6).

D'autre part, pour $E_{e^-} < 20$ keV, nous n'avons donné que les raies d'électrons qui n'offrent aucun doute et dont les transitions correspondantes ont été confirmées par d'autres méthodes : cette région d'énergie est en effet encombrée par le spectre Auger L très complexe.

Spectrométrie à double focalisation

Un grand nombre de raies ont également été mesurées à l'aide du spectromètre $\pi\sqrt{2}$ du Centre, ce qui a permis d'étalonner en valeur absolue les spectres obtenus au spectrographe à 180° par méthode photographique.

La source utilisée pour ces mesures, étant très intense (5mCi), nous avons pu obtenir en particulier des intensités absolues des raies K de transitions d'énergie élevée, là où la méthode photographique ne permet pas d'obtenir une précision suffisante.

Dans le tableau III - b, les raies mesurées au $\pi\sqrt{2}$ et prises pour étalons sont marqués d'un astérisque ($E_{e^-} > 30$ keV).

TABLEAU III - b p. 35

E_e-(keV)	Attribution
1,79	$L_2(20,3)$
2,47	$L_2(20,9)$
4,83	$L_3(20,3)$
5,52	$L_3(20,9)$
10,67	$L_1(29,91)$
11,10	$L_2(29,58)$
11,43	$L_2(29,91)$
12,38	$L_1(31,61)$
13,14	$L_2(31,61)$
14,16	$L_3(29,58)$
14,47	$L_3(29,91)$
16,18	$L_3(31,61)$
24,55	$L_1(43,78)$
24,76	$M_1(29,58)$
24,88	$L_1(44,12)$
25,10	$M_1(29,91)+M_2(29,58)$
25,19	$L_1(44,43)$
25,44	$M_2(29,91)+L_2(43,78)$
25,64	$L_2(44,12)$
25,81	$M_3(29,58)$
25,94	$L_2(44,43)$
26,14	$M_3(29,91)$

E_e-(keV)	Attribution
26,65	$M_4(29,91)$
26,80	$M_1(31,61)+M_5(29,91)$
27,14	$M_2(31,61)+[L_1(46,45)]$
27,84	$M_3(31,61)$
27,99	$L_2(46,45)$
28,37	$L_3(43,78)+M_4(31,61)$
28,54	$M_5(31,61)$
28,72	$L_3(44,12)+N_1(29,91)$
28,86	$N_2(29,91)$
29,04	$L_1(48,30)+L_3(44,43)+N_3(29,91)$
29,7	$O(29,91)$
* 29,82	$L_2(48,30)$
30,42	$N_1(31,61)$
30,58	$N_2(31,61)$
30,65	$L_1(49,88)+K(134,5)$
30,76	$N_3(31,61)$
* 30,97	$L_1(50,20)+L_3(46,45)$
31,39	$L_2(49,88)+O_{1,2}(31,61)$
31,45	$O_3(31,61)$
31,71	$L_2(50,20)+L_1(50,88)$
32,01	$L_1(51,2)$
32,40	$L_2(50,88)$

32,69	$L_2(51,2)$
32,86	$L_3(48,30)$
34,44	$L_3(49,88)$
* 34,76	$L_3(50,20)$
34,97	$L_1(54,2)$
35,44	$L_3(50,88)+L_1(54,65)$
35,70	$L_2(54,2)$
* 36,82	$L_1(56,05)$
* 37,29	$L_1(56,53)$
37,54	$K(141,4)$
* 38,03	$L_2(56,53)$
* 39,32	$M_1(44,12)$
* 39,64	$M_1(44,43)+M_2(44,12)$
* 39,98	$M_2(44,43)$
* 40,38	$M_3(44,12)$
* 40,65	$M_3(44,43)$
* 41,09	$L_3(56,53)$
42,26	$L_1(61,51)$
*43,01	$L_2(61,51)$
43,51	$L_1(62,73)+M_1(48,30)$
43,83	$M_2(48,30)$
44,25	$L_2(62,73)$
44,53	$M_3(48,30)$
45,08	$M_1(49,88)+M_4(48,30)$
45,39	$M_1(50,20)+M_2(49,88)$
45,72	$M_2(50,20)$
46,05	$L_3(61,51)+M_1(50,88)+M_3(49,88)$
* 46,42	$M_1(51,2)+M_2(50,88)+M_3(50,20)$
* 46,97	$M_4(50,20)$
* 47,10	$M_3(50,88)+M_5(50,20)$
* 47,27	$L_3(62,73)+N_2(48,30)$
* 47,46	$N_3(48,30)$
* 48,16	$O_{2,3}(48,30)$
49,02	$N_1(50,20)$
49,16	$N_2(50,20)$
49,34	$N_3(50,20)+M_1(54,2)$
49,55	$L_1(68,80)$
49,97	$O_{1,2}(50,20)$
50,02	$O_3(50,20)$
50,31	$L_2(68,80)$
51,24	$M_1(56,05)$
51,56	
51,71	$M_1(56,53)$
52,06	$M_2(56,53)$

TABLEAU III - b (suite) p. 35

52,77	$M_3(56,53)$	66,2	$K\ L_1\ L_2$
* 53,34	$L_3(68,80)$	67,59	$N_1(68,80)$
* 53,67	$L_1(72,91)$	67,74	$N_2(68,80)$
* 54,43	$L_1(73,70)+L_2(72,91)$	67,92	$N_3(68,80)$
* 55,21	$L_2(73,70)$	68,18	$M_1(72,9)$
55,86	$L_1(75,15)$	68,50	$O_1(68,80)$
56,68	$L_2(75,15)+M_1(61,51)$	68,90	$M_1(73,70)$
57,03	$M_2(61,51)$	69,21	$M_2(73,70)+K\ L_1\ L_3$
57,74	$M_3(61,51)$	69,59	$K(173,5)$
58,25	$L_3(73,70)+M_4(61,51)$	69,93	$M_3(73,70)+K\ L_2\ L_3$
59,60		72,70	$N_{2,3}(73,70)$
59,75	$L_3(75,15)$	73,09	$K\ L_3\ L_3$
60,45	$N_2(61,51)$	73,55	$O_{2,3}(73,70)$
60,63	$L_1(79,77)+N_3(61,51)$	* 74,76	$L_1(94,00)$
61,27	$L_2(79,77)$	* 74,93	$M_1(79,77)$
61,35	$O_2(61,51)$	* 75,28	$M_2(79,77)$
61,42	$O_3(61,51)$	* 75,52	$L_2(94,00)$
63,98	$M_1(68,80)$	* 75,98	$M_3(79,77)$
64,32	$K(168,3)+L_3(79,77)+M_2(68,80)$	* 76,55	$L_2(95,00)+M_4(79,77)$
64,66	$L_1\ (83,9)$	* 76,69	$M_5(79,77)$
65,02	$M_3(68,80)$	* 76,99	$L_1(96,2)$
65,35	$L_2(83,9)$	* 77,23	$(K\ 181,1)$
65,54	$M_4(68,80)+K\ L_1\ L_1$	* 77,93	

* 78,56	$L_3(94,00)+N_1(79,77)$
* 78,75	$N_2(79,77)$
* 79,55	$L_3(95,00)+O_{1,2}(79,77)$
79,79	
* 80,50	$K(184,4)+L_1(99,7)$
* 81,12	$L_1(100,3)+L_2(99,7)$
* 81,87	$L_2(100,3)$
* 84,90	$L_3(100,3)$
88,69	$L_1(107,9)$
89,12	$M_1(94,00)$
89,54	$M_2(94,00)$
89,8	
90,2	$M_3(94,00)$
90,54	$M_2(95,00)$
91,23	$M_3(95,00)$
92,23	$L_2(110,6)$
92,77	$N_1(94,00)$
*93,96	$L_1(113,2)+K(197,7)$ $+N_2N_3(95,00)$
* 94,66	$L_2(113,2)$
* 95,21	$L_3(110,6)$
95,86	$M_2(100,3)$
96,32	
96,57	$M_3(100,3)+K(200,5)$

* 97,70	$L_3(113,2)+K(201,6)$ $+[L_1\ 117]$
* 98,01	$L_1(117,2)$
98,46	$[L_2(117)]$
* 98,88	$L_2(117,2)$
* 99,32	$N_2(100,3)$
* 99,49	$N_3(100,3)$
100,19	$O_2O_3(100,3)$
*100,5	$K(204,3)$
*101,1	$K(205,0)$
101,5	$[L_3(117)]$
*101,8	$L_3(117,2)$
*102,3	$K(206,1)$
*106,8	$K(210,7)+L_2(124,5)$
107,4	
107,9	
108,3	$M_1(113,2)$
108,7	$M_2(113,2)$
109,0	$K(212,7)+L_3(124,5)$
109,4	$M_3(113,2)$
112,2	$M_2(113,2)$
112,4	$M_3(113,2)+M_1(117,2)$
113,1	$O_2O_3(113,2)$
*114,9	$K(218,8)+K(219,0)$

119,1	$M_2(123,6)$ (ou) et $L_1(138,4)$	* 186,6	$L_2(205,0)$
119,9	$M_3(123,6)$ $L_2(138,4)$	* 186,9	$L_1(206,1)$
122,3	$K(226)+L_1(141,5)$	* 187,7	$L_2(206,1)$
* 130,9	$K(234,9)$	* 188,9	$L_3(204,3)+[K(292,6)]$
* 132,1	$K(236,0)$	* 190,7	$L_3(206,1)$
* 146,3	$K(250,2)$	* 191,5	$L_1(210,7)$
* 146,5	$K(250,4)$	* 192,7	$K(296,6)$
* 148,7	$K(252,6)$	* 193,6	$L_1(212,7)$
* 149,8	$L_1(168,4),[L_3(164,7)]$	* 194,2	$L_2(212,7)$
* 150,8	$K(254,7)$	195,1	
* 152,4	$K(256,3)$	* 196,1	K 300,0
158,8	$K(262,7)$	* 196,4	K 300,3
164,1	$K(268,0)$	199,6	$L_1(218,8)$
* 169,1	$K(273,0)$	199,8	$M_2(204,3)$
170,8	$K(274,7)$+desc.	200,1	$M_1(205,0)$
* 175,9	$K(279,8)$	* 200,6	$K(304,5)+M_3(204,3)$ $+M_1(205,0)+M_1(206,1)$
177,1	$K(281,0)$ [queue de $K(281,5)$]	201,6	$M_2(206,1)$
177,6	$K(281,5)$	202,3	$M_3(206,1)$
(180,4)	$K(284,4)$	203,3	$N_2+N_3(204,3)$
* 182,3	$K(286,2)+L_1(201,6)$faible $+K(285,5)$	203,8	$N_1(205,0)$
183,3		204,3	$K(308,3)$
* 185,1	$L_1(204,3)$	205,1	$N_2N_3(206,1)$
* 185,8	$L_1(205,0)+L_2(204,3)$ $+K(289,6)$	* 208,8	$K(312,7)+M_1(212,7)$

* 210,9	K(314,8)
214,0	M_1(218,8)
(214,6)	(K 318,6)
* 215,6	L_1(234,9)+K(319,2)
* 216,3	L_2(234,9)
* 216,8	L_1(236,0)
* 217,5	L_2(236,0)
* 220,5	L_3(236,0)
* 221,1	K(325,0)
226,0	K(329,9)
* 230,5	K(334,5)+M_1(234,9)
* 231,1	L_1(250,2)+L_1(250,4) +M_1(236,0)+M_2(236,0)
* 231,7	L_2(250,2)
232,2	M_3(236,0)
* 233,3	L_1(252,6)
233,7	N_1(234,9)
* 234,6	L_3(250,2)+N(236,0)
235,5	L_1(254,7)
* 237,1	L_1(256,3)
* 237,8	L_2(256,3)
* 238,6	K(342,5)
* 240,7	L_3(256,3)
245,6	M_1(250,2+250,4) +M_2(250,2)
246,5	K(350,5)
247,6	M_1(252,6)
(248,7)	[K(352,6)]
249,1	N_1(250,2+250,4)
253,7	L_1(273,0)
254,5	L_2(273,0)+desc.
257,5	L_3(273,0)+desc.
* 260,5	L_1(279,8)
* 261,1	L_2(279,8)
* 262,3	L_1(281,4)
* 263,0	L_2(281,4)
* 266,9	L_1(286,2)
* 267,7	L_2(286,2)
270,7	L_3(286,2)+desc.
275,0	M_1(279,8)
* 276,7	$M_{1,2}$(281,4)
* 277,4	L_1(296,6)
* 278,2	L_2(296,6)
* 279,6	K(383,6)
* 280,8	L_1(300,0+300,3)
* 281,3	M_1(286,2)
* 281,6	L_2(300,0 et 300,3) +M_2(286,2)
* 284,6	L_3(300,0+300,3)

* 285,2	$L_1(304,5)+N_1(286,2)$
* 286,1	$L_2(304,5)$
* 291,8	$M_{1,2}(296,6)$
* 293,5	$L_1(312,7)$
* 294,3	$L_2(312,7)$
295,5	$L_1(314,7)+N_1(296,6)$ $+M_{1,2}(300,0+300,3)$
299,7	$M_{1,2}(304,5)$
303,3	$N_1(304,5)$
307,8	$M_1(312,7)$
308,3	$M_2(312,7)$
309,9	$M_1(314,7)$
310,6	$L_1(329,9)$
311,4	$L_2(329,9)+N_1(312,7)$
* 314,4	$L_3(329,9)$+desc.
* 315,2	$L_1(334,5)$
* 316,0	$L_2(334,5)$
319,0	$L_3(334,5)$
* 323,3	$L_1(342,5)$
* 324,5	$L_2(342,5)$
325,0	$M_1(329,9)$
* 327,1	$L_3(342,5)$
329,6	$M_{1,2}(334,5)$
327,7	$M_{1,2}(342,5)$

III - B - 4 - Spectrométrie de coïncidences

Malgré le nombre des données fournies par la spectrométrie directe : spectrométrie α fixant l'emplacement de beaucoup de niveaux, spectrométrie γ donnant les intensités γ et permettant très souvent l'attribution des transitions par la recherche des différences d'énergie, spectrométrie de conversion déterminant les multipolarités des transitions et détectant celles pour lesquelles un coefficient de conversion trop élevé empêche l'observation par spectrométrie γ - il est apparu rapidement que la spectrométrie de coïncidences était indispensable. La grande densité de niveaux, et un hasard malheureux, font qu'un nombre important de transitions peuvent sur la base des différences d'énergie et des intensités d'alimentation disponibles, être placées en plusieurs endroits du schéma. En effet, sur la base des différences d'énergies entre niveaux connus, la densité de transitions possibles est, par intervalles de 10 keV, de 30 jusqu'à 100 keV, et décroit de 20 à 10 pour des énergies allant de 100 à 700 keV. Par exemple, comme il sera montré plus bas, il y a deux transitions de 113,2 keV indiscernables en énergie, deux de 117,2 keV différant de moins de 0,1 keV, deux transitions de 68,8 keV d'énergies presque identiques, deux transitions à 300,0 et 300,3 keV, deux de 218,8 et 219,0 keV, deux de 314,6 et 314,7 keV, etc. L'étude des coïncidences α-γ et γ-γ est ainsi apparue comme étant la seule capable de lever des doutes et de supprimer des ambiguités. Quoique le spectre α détermine les emplacements des niveaux, un certain flou subsiste, car la précision des énergies ainsi obtenues ($\frac{\Delta B\rho}{B\rho} \sim 10^{-4}$) ne permet guère d'obtenir des différences d'énergie à mieux que 0,5 à 1,5 keV près, et, comme le montrent les quelques exemples cités , ceci est très insuffisant.

Les informations données par les expériences multidimensionnelles α-γ et γ-γ sont complémentaires : en α-γ, on observe d'où vient l'alimentation α des transitions, sans pour autant que soit fixée sans ambiguité l'endroit où se trouve placée cette transition, car souvent il s'agit d'une cascade dont le premier terme peut échapper à l'observation (conversion très élevée, proximité d'une transition qui en masque une autre).
De plus, le détecteur α a généralement une résolution assez pauvre, il existe une queue importante derrière la raie et les rayonnements γ de faible intensité peuvent échapper à l'observation. En γ-γ on n'observe que les cascades, mais la bonne détermination des énergies permet d'utiliser beaucoup mieux la règle comme : si des doutes peuvent exister sur l'emplacement d'une transition par suite de l'imprécision des énergies α, il est beaucoup plus rare que deux transitions en cascade correspondent à plusieurs possibilités d'emplacement.

B - 4 - a Coïncidences γ-γ

Dispositif expérimental

Le schéma étant déjà étudié depuis longtemps, certaines transitions très intenses n'offraient pas de problème. L'expérience a donc été conduite pour accumuler une forte statistique. Le dispositif est reproduit sur la figure III- 10 et est du type à "géométrie proche" qui assure de grands angles solides et un taux de coïncidences élevé avec un rapport coïncidences fortuites/ coïncidences vraies, faible. L'inconvénient, très apparent sur la figure III-12 , est la diffusion d'un photon d'un détecteur vers l'autre avec apparition dans le graphique d'une ligne somme où $E_x + E_y = h\nu$. Ces lignes rendent difficiles sinon impossible l'utilisation d'une partie de la surface (E_x, E_y). Ceci peut évidemment être évité par le dispositif de la figure III- 11 où un absorbant entre les détecteurs empêche une telle diffusion.

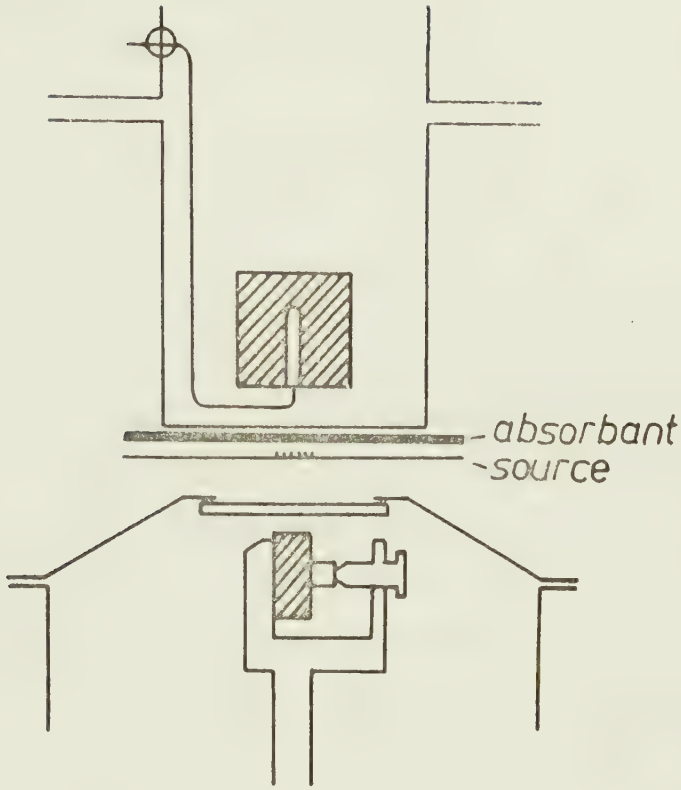


Fig.III-10

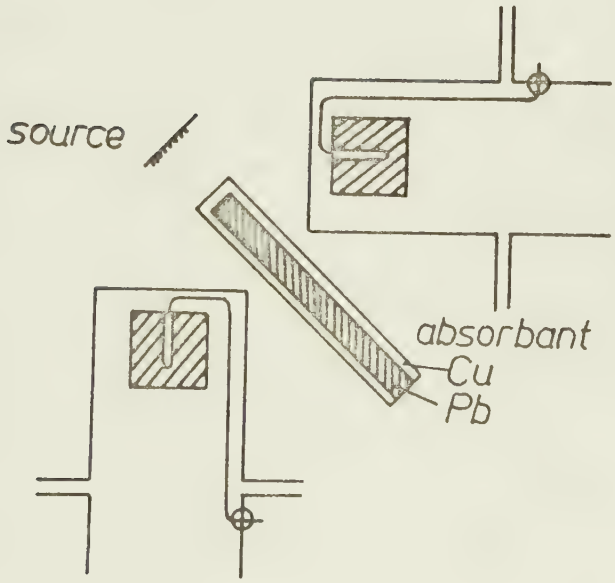


Fig III-11

Mais l'éloignement nécessaire de la source diminue dans ce cas les angles solides et, donc, pour un taux de coïncidences raisonnable, le taux relatif de fortuites augmente, ce que nous avons voulu éviter dans le cas des problèmes spécifiques en question ici.

Un des détecteurs (voie x), de 3 cm^3 et de résolution 0,9 keV à 100 keV, était irradié par la tranche (zone intrinsèque) à travers une fenêtre de beryllium laissant passer les rayonnements X_L. Le deuxième détecteur (voie y), de 20 cm^3 et de résolution 2,5 keV était pourvu d'un absorbant (Sn + Cu + Al) et ne détectait que les rayonnements d'énergie supérieure à 100 keV. De cette façon, les taux de comptage sur les voies x et y étaient de 1400 c/s et 2000 c/s avec un taux de coïncidences vraies de $\sim$ 40 c/s et un taux de coïncidences fortuites de 0,5 à 0,6 c/s.

Par intermédiaire d'un interface parallèle - série, les convertisseurs x et y étaient reliés par coaxial à l'ordinateur IBM 360 - 50 de l'Institut de Physique Nucléaire qui stockait et classait les évènemets E_x E_y codés en 2^{10} x 2^{10} canaux. Le contrôle de l'expérience utilisait 3 blocs mémoire Intertechnique : deux pour accumuler les spectres E_x et E_y correspondant aux sommations sur les axes x et y du contenu du spectre multidimensionnel enregistré dans la mémoire de l'ordinateur. Ces deux spectres, obtenus par liaison directe des codeurs avec les blocs mémoire, étaient comparés à intervalles de temps réguliers avec les sommations correspondantes effectuées sur le spectre classé sur le disque de l'ordinateur. Des écarts de l'ordre de 5°/$_{oo}$ étaient jugés acceptables et correspondaient à certains temps morts de l'ordinateur (fonctionnement des mémoires tampon), temps morts supérieurs à ceux de la chaîne Intertechnique.

Le dernier bloc mémoire enfin servait à enregistrer, par l'intermédiaire d'un convertisseur temps-amplitude, le

spectre des écarts de temps entre impulsions coïncidentes à l'entrée du tiroir de coïncidences rapides, afin de contrôler l'ajustage des retards des deux voies. Pour pouvoir enregistrer sur la voie x des énergies à partir de 12 keV, le temps de coïncidence était assez long (2τ = 80 nanosec), car le jitter intervient beaucoup pour des impulsions aussi faibles.

La durée de l'accumulation a été de 11 jours, totalisant effectivement 240 heures d'évènements. Les sources de ^{227}Th étaient obtenues par volatilisation à 2000° de l'oxyde purifié avec renouvellement toutes les 12 heures. Le taux de dérivés (^{223}Ra, ^{219}Rn, etc) par rapport à l'équilibre était en moyenne de 1%. Quelques pics de coïncidences sont ainsi dûs aux dérivés, mais concernent des énergies bien connues et faciles à identifier. Un bloc mémoire, divisé en deux, enregistrait en même temps les spectres directs x et y pendant les deux premières heures après chaque renouvellement de source.

Traitement des données

Au moyen de programmes mis au point par Mr. Jezequel, les résultats ont été tout d'abord visualisés par le traçage d'une carte (fig. III - 12 , programme "Nucart") où les hauteurs des points N (x, y) sont matérialisées par une "teinte" obtenue par un microdessin plus ou moins dense dans chaque case x, y (0,8 x 0,8 mm^2). On dispose de 8 teintes, chaque échelle complète pouvant être répétée quatre fois, ce qui donne 32 niveaux. La présence de très grands écarts d'intensité a conduit à adopter un facteur assez grand : 1,4 entre les échelles afin de rendre lisibles les faibles intensités. C'est après étude de cette carte qu'est fixé le programme de traçage de courbes : les abscisses

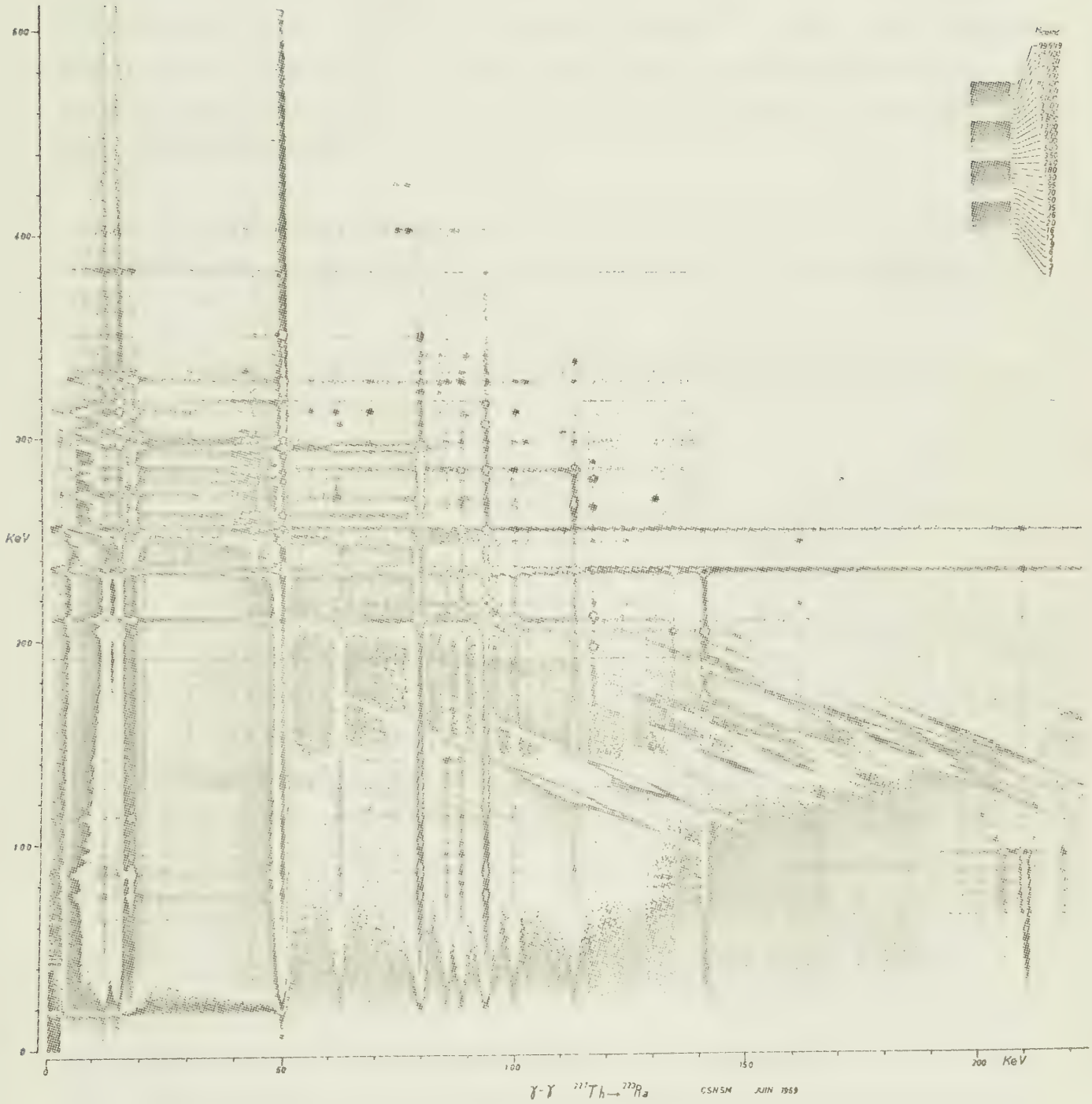

KeV
0
100
200
300
400
500
0
50
100
150
200 KeV
γ-γ 227Th→223Ra CSNSM JUIN 1969

Fig. III - 12

et ordonnées des pics de coïncidence ayant été classées (xo, yo) les courbes sont sorties en échelle linéaire, moyennées sur xo - 1, x_o, x_o + 1 suivant l'axe y et sur y_o - 1, y_o et y_o + 1 suivant l'axe des x. Les courbes destinées à fournir le fond sont souvent difficiles à choisir, la densité de lignes est très grande et dans beaucoup de régions de la carte on n'a accès au fond qu'après des décompositions.

Déterminations d'intensités. Comme nous allons le voir, ces déterminations sont souvent très difficiles à extraire des données dans le cas des coïncidences γ-γ.

coïncidences vraies. La figure III - 13 explicite les notations d'un cas de triple cascade, pris comme exemple (les quantités indiquées sur cette figure sont uniquement celles qui interviennent dans la formulation des intensités de coïncidences). Les unités d'intensité sont celles utilisées habituellement dans la représentation du schéma, elles sont normalisées à une activité d'une désintégration par unité de temps :

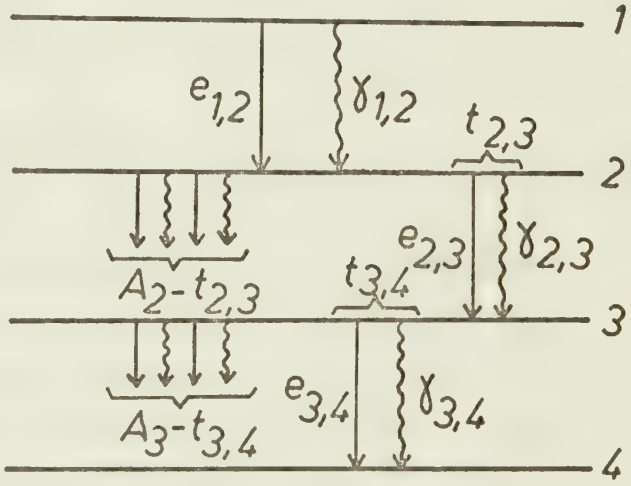


Fig.III-13

A_i est l'intensité d'alimentation ou de désexcitation totale du niveau i, γ_{ij} est l'intensité du rayonnement γ reliant les niveaux i et j et t_{ij} est l'intensité de transition correspondante.

ε_x (E) est la fonction d'efficacité de détection du détecteur de la voie x, ε_y (E) celle de la voie y, C_θ (ij, kh) un coefficient de corrélation angulaire.

Comme il est dit plus haut, les courbes sont établies par moyenne de 3 canaux, et on caractérise un pic de coïncidences au moyen de sa hauteur au dessus du fond, un profil type étant ajusté sur la courbe expérimentale avec une échelle qui lui donne la même surface. Le volume (à 3 dimensions) du pic d'énergie totale représente le nombre d'évènements coïncidents et se trouve dans un rapport donné R (Ex, Ey) avec la hauteur mesurée. En première approximation, une expression de type

$$R(E_x, E_y) = R_0 (1 + k_x E_x)(1 + k_y E_y) \qquad (1)$$

est suffisante et tient compte de la largeur lentement variable du pic en fonction de l'énergie.

Le nombre de coïncidences observé par unité de temps est alors :

$$N(E_x, E_y) = \mathcal{A}\, \gamma_{12} \cdot \frac{t_{23}}{A_2} \cdot \frac{\gamma_{34}}{A_3} \cdot \frac{C_\theta(12,34)\, \varepsilon_x(E_x) \cdot \varepsilon_y(E_y)}{R(E_x, E_y)} \cdot T(E_x) \qquad (2)$$

où $\mathcal{A}$ désigne l'intensité de la source et où T (Ex) est une fonction qui corrige l'efficacité du fait que, pour les basses énergies (détecteur x) le rendement de coïncidence diminue par suite du type de prélèvement de temps utilisé pour la coïncidence rapide T (Ex) = 1 pour Ex > 100 keV et est ajusté expérimentalement au moyen du rapport 50,2 keV/20,3 keV, rayonnements issus du même niveau et au moyen des rapports Lα : Lβ : Lγ du spectre de coïncidences sommé sur l'axe x.

Cette expression se simplifie en introduisant :

$$G(E_x, E_y) = \frac{\varepsilon_x(E_x) \cdot \varepsilon_y(E_y) \cdot T(E_x)}{R_0 (1 + k_x E_x)(1 + k_y E_y)}$$

et supposant $C_\theta = 1$. Cette hypothèse est nécessaire, car admettre le contraire complique extraordinairement l'analyse. Ou bien une transition est bien connue, et l'analyse multidimensionnelle est inutile, ou bien elle est inconnue, et dans ce cas l'intensité est fonction des γ_{ij}, de α_{ij} total, des coefficients de conversion α_{ij} totaux, du mélange de multipolarités, des valeurs des Ai, et de C_θ , fonction à son tour de 3 ou 4 spins et des coëfficients de mélange δ_{12} et δ_{34} et il est vain de déterminer autant d'inconnues avec si peu de données. Il ne reste donc qu'à choisir des conditions expérimentales qui rendent C_θ peu sensible au terme en A_2 d'une éventuelle corrélation angulaire entre les deux voies : c'est ce qui a été recherché ici avec une géométrie très proche avec Ω_x et Ω_y d'ouverture $\sim 30°$. On a ainsi :

$$N(E_x, E_y) = \mathcal{A} \frac{\gamma_{12}\, t_{23}\, \gamma_{34}}{A_2\, A_3}\, G(E_x, E_y) \qquad (3)$$

Il faut noter qu'on retrouve le cas de la cascade simple en prenant $\frac{t_{23}}{A_2} = 1$.

La figure III-14 montre le réseau de courbes de niveaux de la fonction G (Ex, Ey) qui a servi dans cette expérience. Il faut tenir compte de ce que, dans des cas extrêmes, l'hypothèse $C_\theta = 1$ peut introduire des erreurs notables (cas $A_2 = 1$, atténuation nulle, d'ailleurs peu vraisemblable pour un noyau impair). En pratique G est connu à un facteur près, car les valeurs numériques sont testées au moyen d'une cascade intense et bien connue (ici la cascade 236,0* 50,2 keV, pour laquelle $C_\theta = 1$)

Coïncidences fortuites. Leur influence peut être très importante. Afin de les évaluer, il faut d'abord montrer de quelle façon la hauteur d'un pic, en absence de coïncidences fortuites, est déterminée à partir du contenu des canaux.

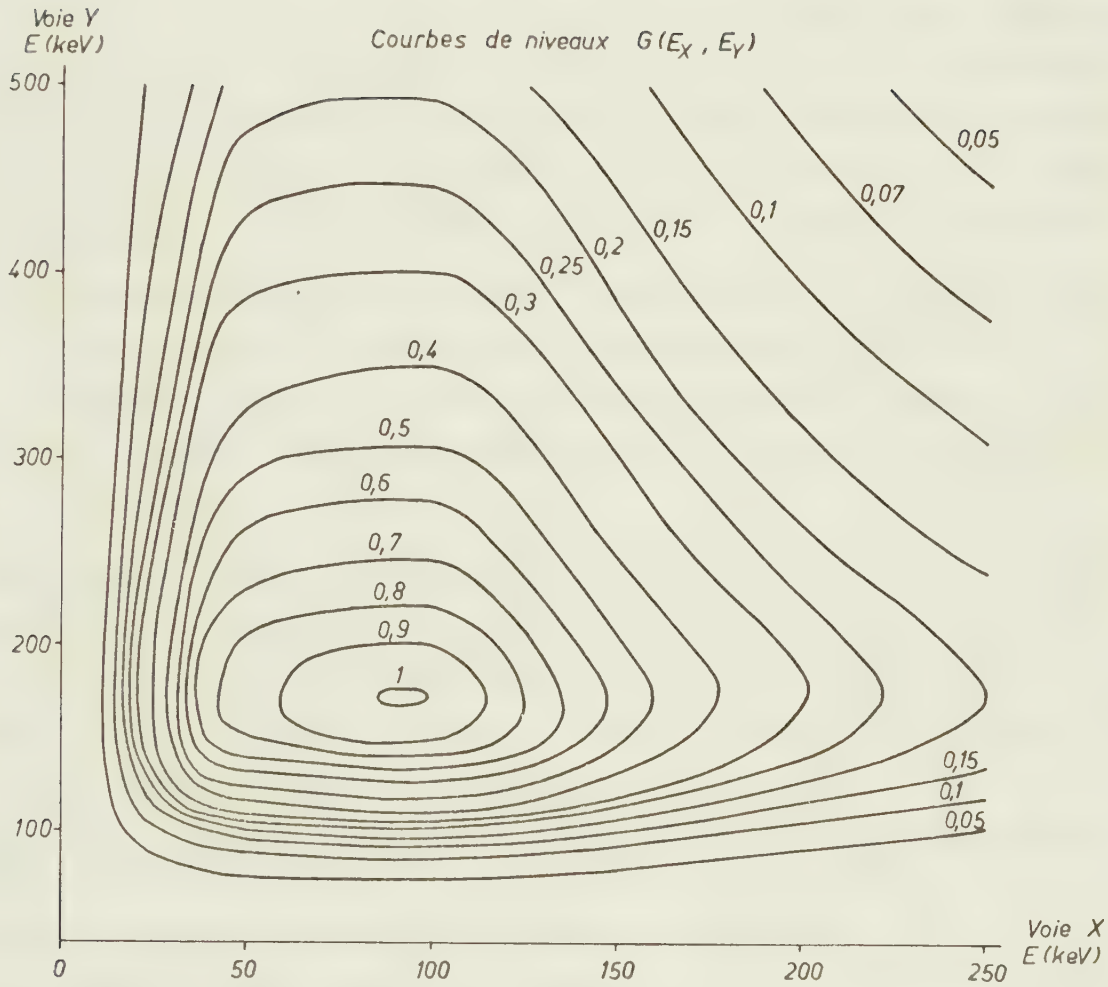

Voie Y
E (keV)
Courbes de niveaux G(E_X , E_Y)
500
400
300
200
100
0
50
100
150
200
250
Voie X
E (keV)
0,05
0,07
0,1
0,15
0,2
0,25
0,3
0,4
0,5
0,6
0,7
0,8
0,9
1
0,15
0,1
0,05

Fig. III-14

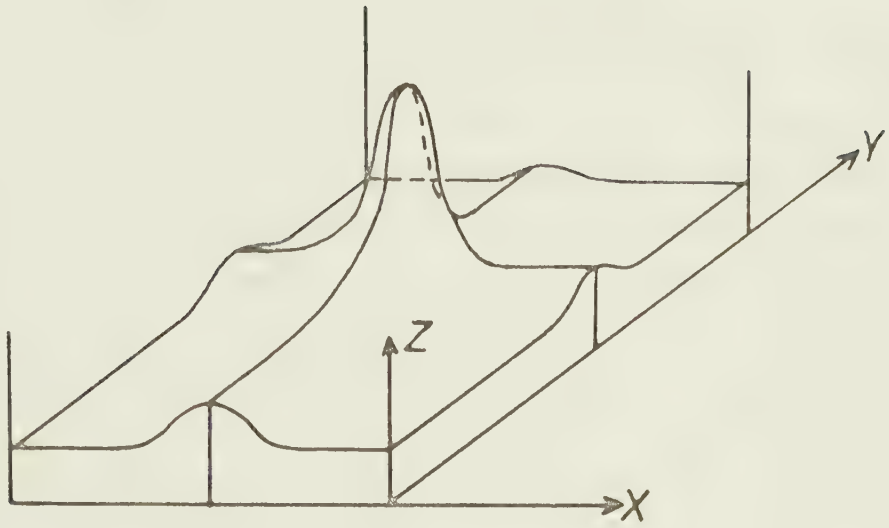
En général, la complexité du spectre et la très grande quantité de cascades font qu'un même rayonnement est en coïncidence avec plusieurs énergies. Les coïncidences de deux pics d'énergie totale Ex et Ey sont donc accompagnées de coïncidences pic_x - compton y, pic_y - compton x et compton x - compton y qui forment, sur la surface N (x, y) (figure III -15a) respectivement deux arêtes suivant x et y, et le fond. En supposant en première approximation que, pour de petits intervalles d'énergie, le fond peut être représenté par une surface doublement réglée, des soustractions peuvent être opérées au moyen d'interpolations linéaires, et on écrit que la hauteur vraie du pic au dessus du fond s'obtient après soustraction de la somme des deux arêtes qui, à l'endroit de leur croisement, s'additionnent et provoquent, même en l'absence d'une coïncidence vraie, l'apparition d'un pic parasite. La figure III-15b montre les notations adoptées : l'ordre des indices étant xy

- o désigne l'énergie du pic (H_{oo}, hauteur à l'endroit xo et yo)
- i une énergie inférieure à, respectivement xo et yo et caractéristique de l'endroit où on juge que le fond est atteint
- s, de même, l'énergie supérieure à xo ou yo où le fond est atteint.

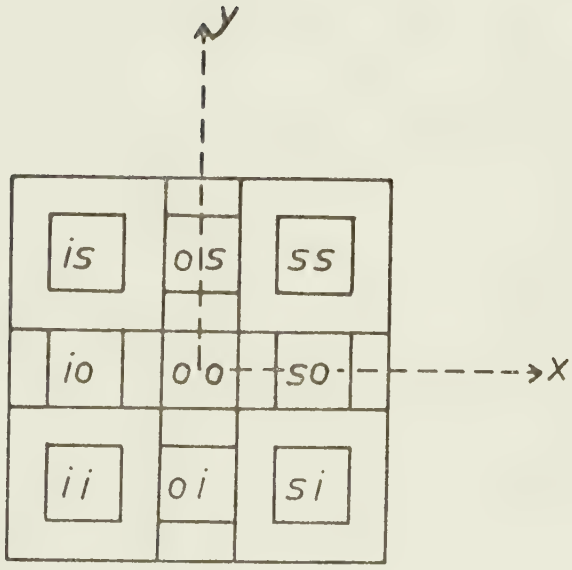
Les quatre fonds de référence ont ainsi les indices is, ss, si et ii, les arêtes sont prises aux endroits os et oi suivant l'axe y et so et io suivant x. En notant que les arêtes nettes ont pour hauteur $H_{os} - \frac{1}{2}(H_{is} + H_{ss})$ et ainsi de suite et désignant par P_{oo} la hauteur vraie du pic, on a :

$$P_{oo} = H_{oo} - \frac{1}{2}(H_{os} + H_{oi} + H_{so} + H_{io}) + \frac{1}{4}(H_{is} + H_{ss} + H_{si} + H_{ii}) \quad (4)$$

S'il existe un fond de coïncidences fortuites, celui-ci a une structure de même type que la surface vraie : fond et arêtes qui se croisent et qui forment une surface h(x, y). L'équation (4)



a)



b)

Fig.III-15

reste encore valable si on retranche terme à terme une surface de l'autre, donc si on remplace partout H_{jk} par $(H_{jk} - h_{jk})$.

Les coïncidences fortuites sont données classiquement par :

$$n(\Delta E_x, \Delta E_y) = 2\tau\, I_x(E_x) I_y(E_y) \Delta E_x . \Delta E_y$$

où Ix et Iy désignent les comptages relevés respectivement aux énergies Ex et Ey sur des spectres directs enregistrés durant la même expérience et ΔEx, ΔEy les intervalles d'énergie choisis (comme pour les coïncidences vraies : sommations sur trois canaux). Ici encore, un coefficient expérimental doit intervenir, pour lequel on utilise une coïncidence apparemment intense dont on est sûr, d'après le schéma, qu'elle n'existe pas et doit être annulée par ajustage de la constante intervenant dans les coïncidences fortuites. On écrit ainsi :

$$h(x,y) = f . I_x(x) I_y(y)$$

et la hauteur vraie du pic de coïncidences devient, pour une cascade donnée :

$$\begin{aligned} P_{oo} = H_{oo} - f . I_x(o) I_y(o) - \tfrac{1}{2}\big[H_{os} + H_{oi} + H_{so} + H_{io} - f\,(I_x(o) I_y(s) \\ + I_x(o) I_y(i) + I_x(s) I_y(o) + I_x(i) I_y(o))\big] + \tfrac{1}{4}\big[H_{is} + H_{ss} + H_{si} + H_{ii} \\ - f\,(I_x(i) I_y(s) + I_x(s) I_y(s) + I_x(s) I_y(i) + I_x(i) I_y(i))\big] \end{aligned} \qquad (5)$$

On a insisté ici longuement sur cette analyse des coïncidences parce qu'il est coutumier de ne pas utiliser celles-ci à des fins numériques, mais seulement pour constater si oui ou non une cascade existe. En fait, il est possible d'extraire à partir des données expérimentales de nombreux renseignements, P_{oo} étant relié à N(Ex, Ey) de l'équation (2) par un coefficient empirique qu'on ajuste sur quelques cascades intenses connues.

y ↓ \ x →	X_L	20,3	24	29,9	31,6	42,2	43,8	50,2	54,2	56,0	56,6	61,5	62,5	64,3	64,7	* 68,7	79,8	90,0	94,0	96,1	99,5	99,7	100,3	102,5	108,0	110,6	* 113,1	* 117,2	124,7	134,5	141,2	162,1	170,0	171,4
141,2	●															○							○				●							
168,3																											●							
174,1																															●			
184,7	●							●														●	○								●			
197,7																												●						
200,5	●							●									●			●														
201,6																			●								●							
204,3	●					●										●							●											
205,0	●																													●	●			
206,1	●							●					●				●		●															
210,7	●							●					●				●		●															
212,6	●															●							●					●						
* 219	●							●	●			●	●				●		●	●								●	●			●		
230,4																											●							
234,9																						●			●					●	●		●	
236,0	●	●	●				●	●			●			●	●											●								
* 250,3	●			●					●				●							●								●	●			●		
252,6													●						●															
254,7	●					●		●									●																	
256,3	●			●			●				●			●	●											●								
262,8	●							●									●																	
267,3																			●									●						
268,0																			●								●							
270,6																			●								●							
273,0	●			●	●	●						●														●								
274,7																															●			
279,7	●							●																										
281,0																			●															
281,4	●											●	●								●							●						●
284,4	●							●																										
285,5	●												●						●								●							
286,2	●						●				●			●	●																			
* 289,5								●									●											●						
292,5	●							●																										
296,6	●	●						●		●						●																		
300,0	●			●												●								●										
300,3		●						●																										
304,5	●			●		●																				●								
308,4	●							●					●				●		●															
312,7	●																	●																
* 314,8	●			●	●					●		●				●							●											
318,5													●						●															
319,2								●																										
324,9								●									●																	
326,2								●																										
329,9																●								●										
334,5	●					●																				●								
340,0																											●							
342,5																		○																
348,5	●			×																														
350,5																																		
352,6	●							●									●																	
362,4	●											×																						
370,9	●											×																						
374	●																																	
382,3	●							●																										
383,6	●											×																						

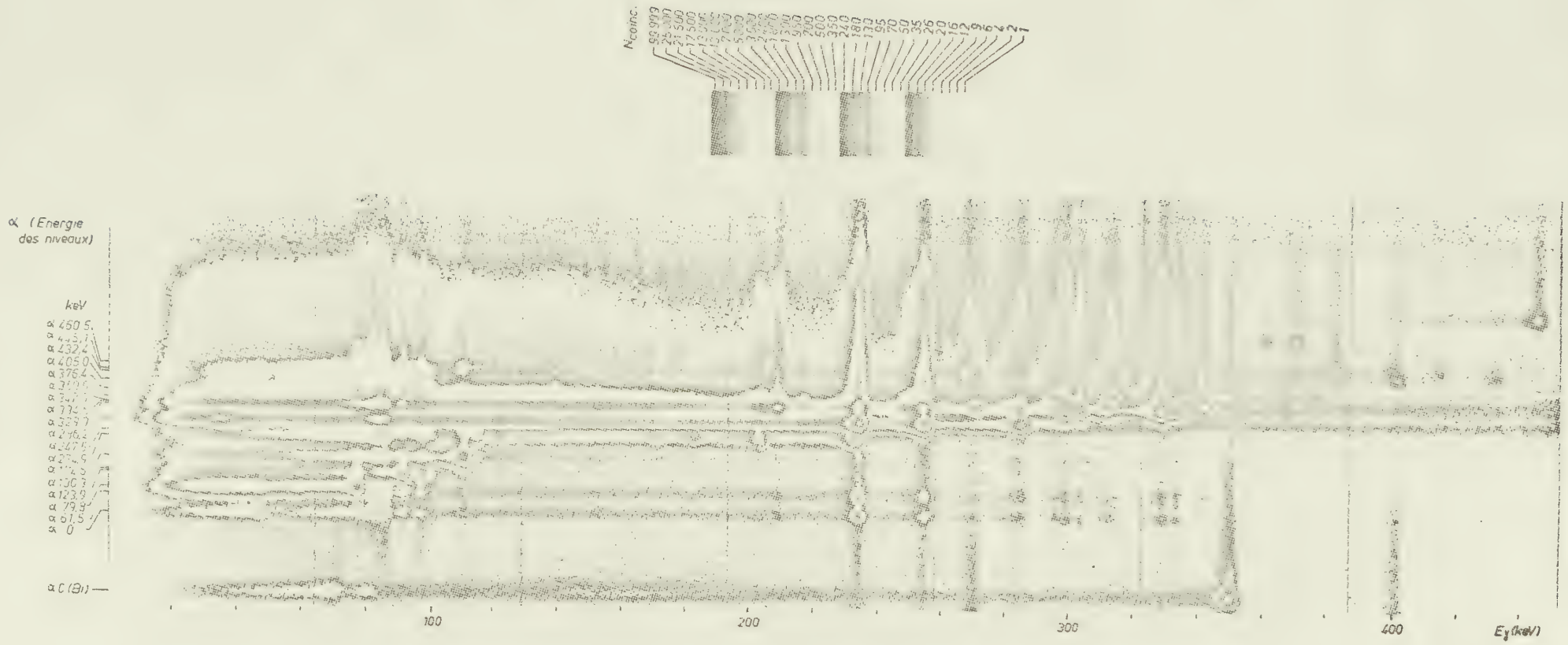
tableau III -c

L'équation (5) est facile à programmer, en principe, si on standardise les carrés de la figure III-15 (nous avons toujours pris des surfaces de 3 x 3 canaux). La figure III-12 montre cependant clairement que les cas compliqués sont très fréquents, lorsque des pics ou des arêtes sont trop proches et exigent des décompositions. En pratique, le procédé d'analyse est donc long, et réservé aux cas délicats. Par ailleurs, l'équation (2) montre que le nombre d'inconnues est généralement supérieur à celui des données, et chaque cas de cascade doit être résolu en faisant appel aux données que peuvent fournir les autres méthodes : spectres γ directs, spectres de conversion, bilans, cascades connues et proches.

Le tableau III- c reproduit de façon conventionnelle les coïncidences observées, c'est-à-dire, par la simple mention de l'existence. Les analyses quantitatives seront données plus bas lors de l'examen du schéma, niveau par niveau.

B-4-b- Coïncidences α - γ.

Le montage électronique a été, pour cette expérience, à peu près, identique à celui décrit plus haut pour les coïncidences γ - γ : coïncidences conventionnelles entre un détecteur α à barrière de surface (Si-Au) et un détecteur Ge-Li de 20 cc assemblés en géométrie très proche. Transmission par interface parallèle-série à l'ordinateur IBM 360-50 de l'I.P.N. des amplitudes codées par des convertisseurs Intertechnique CA 13. Choix de la bande d'énergie α par un conditionneur AP 19 - Contrôle au moyen de blocs mémoire des spectres sommés sur x et y. Le nombre de canaux a été ici de 512(voie α) x 1024 (voie γ) la durée d'expérience de 140 h et le nombre d'évènements accumulés de $\sim 2.10^7$. Cette accumulation a permis de détecter en



Coïncidences α-γ – $^{227}Th \longrightarrow {}^{223}Ra$ –

Fig. III – 16

coïncidences les rayonnements d'intensité supérieure à quelques 10^{-5} pour des énergies supérieures à 260 keV. En dessous de cette énergie, l'intense fond Compton des rayonnements de 236 et 256 keV rend l'intensité limite moins bonne, de l'ordre de 10^{-4}.

Il est utile de comparer ici les mérites des deux méthodes : coïncidences α-γ et coïncidences γ-γ.

- L'interprétation des coïncidences $(\alpha_1-\gamma_2)$ ne nécessite pas la connaissance des bilans d'intensités, comme c'est le cas des coïncidences $(\gamma_1-\gamma_2)$ où il faut connaître la quantité $I\gamma_2/A_2$ (voir paragraphe B-5-a). L'interprétation donne en principe accès à toutes les cascades qui alimentent le niveau de départ (voir cependant d).

- La jonction détectrice α est facilement rendue mobile, et permet, en jouant sur le facteur distance, d'ajuster le comptage de la voie α au taux de comptage optimum : les sources, renouvellées toutes les 12 heures et préparées par volatilisation de l'oxyde de ^{227}Th, ont présenté en effet des variations d'intensité involontaires de $\pm$ 30 %, mais le taux d'acquisition des coïncidences a pu être maintenu à 40 c/s, ce qui constituait le compromis optimum entre évènements fortuits et la qualité statistique de l'accumulation ($\sim$ 1 % de coïncidences fortuites).

- Le spectre γ sommé suivant les énergies α est, en principe, identique au spectre γ direct, puisque tout γ est en coïncidence, avec une particule α. L'évaluation des composantes fortuites en est facilitée. De façon générale, les pics fortuits sont plus faciles à traiter et moins gênants. Cependant, dans le type de géométrie proche utilisé dans cette expérience, l'effet des corrélations angulaires peut ne pas être négligeable, et cela a été le cas pour quelques rayonnements qui présentent des écarts par rapport aux spectres directs : citons en particulier les rayonnements de 304,5 et 334,5 keV qui semblent présenter une forte corrélation angulaire vers l'avant.

- La mauvaise résolution en énergie (largeur à mi-hauteur de l'ordre de 25 keV) et la queue importante des pics (résidu de l'ordre de 10^{-3} à 100 keV de distance en énergie du pic) données par un détecteur α travaillant en régime de comptage élevé, sont très apparentes sur la figure III-16 qui reproduit l'histogramme de l'expérience $\alpha - \gamma$ avec les mêmes conventions d'intensités de teintes que pour l'histogramme des coïncidences $\gamma - \gamma$ (figure III-12). La queue très longue qui suit chaque pic $\alpha - \gamma$ masque facilement des transitions de faible intensité situées suivant l'arête α. L'analyse exige dans tous les cas une analyse soignée des courbes $E_\gamma(\alpha)$ et $E_\alpha(\gamma)$ ainsi que les courbes situées de part et d'autre des arêtes.

Le tableau III-d donne les coïncidences observées qui ont été utilisées, avec l'ensemble des autres données, pour l'établissement de la liste des transitions avec leurs attributions. Sur ce tableau, on ne trouvera que les transitions et les niveaux qui interviennent dans les coïncidences $\alpha - \gamma$ observées expérimentalement. D'autre part ces coïncidences sont notées sous forme d'un trait qui traduit le fait que l'emplacement en énergie α est plus imprécis que l'emplacement fixé par coïncidences $\gamma - \gamma$.

tableau III - d

γ ↓ \ α →	79,8	123,9	130,3	174,7	234,9	247,5	280,3	286,2	315,8	329,9	334,5	342,7	350,5	369,4	376,4	404,9	423,8	432,4	445,1	460,2
79,8	■																			
94,0		■		■		■					■				■			■		
100,3			■																	
113,1				■		■									■					
117,2						■													■	
134,5													■							
141,4															■					
164,9								■												
173,5				■																
184,7				■																
188,8																		■		
201,6															■					
204-206				■					■	■								■		
210,7										■										
212,7											■	■								
219,0											■									
234,9				■																
236,0							■		■											
250,2									■											
252,6														■						
254,7										■										
256,3							■		■											
262,6											■									
273,0										■										
279,8									■											
281,4											■									
285,5																			■	
286,2							■		■											
289,6														■						
292,5											■									
296,6														■						
300,0									■											
304,5										■										
308,4																	■			
312,7											■									
314,9														■						
319,0													■							
326,4														■						
329,9									■											
334,5										■										
342,5											■									
346,4													■							
350,5												■					■			
352,6																	■			
369,4													■							
371,0																■				
376,4														■						
382,5																			■	
383,6																				

III - B - 5 - Mesures de vies moyennes

Les seules mesures de périodes effectuées dans ^{223}Ra concernent les niveaux de 286,2 et 50,2 keV [VA (57)] qui présentent des périodes assez longues : respectivement $(8 \pm 1)10^{-10}$ sec et $(6,3 \pm 0,7)10^{-10}$ sec. Depuis, les méthodes électroniques modernes permettent d'accéder à des périodes plus courtes, mais seulement avec des détecteurs rapides (NaI) qui auraient, dans le cas présent de ^{223}Ra, une résolution en énergie très insuffisante.

Aussi avons-nous fait appel à la possibilité qu'offre l'émission α de projeter des atomes de recul dont on étudie l'émission en vol, soit d'électrons de conversion, soit de rayonnements γ.

III - B - 5 - a - Mesures de vies moyennes par déformation de la bande Doppler.

Nous ne reviendrons pas sur le principe de la méthode qui a été exposé au chapitre II § I - 2 - c_2. Il faut cependant souligner les exigences de la méthode :

- source extrêmement mince (densité superficielle $<$ quelques $\mu g/cm^2$).

- conditions d'optique électronique très bonnes, puisqu'il s'agit d'analyser des variations de profils de raies en fonction de la tension de décélération appliquée.

- une difficulté qui sera rencontrée aussi dans l'analyse des rayonnement γ émis en vol (§ B - 5 - b) est qu'une formulation mathématique rigoureuse nécessite la connaissance exacte du spectre des vitesses de recul pour tous les angles d'émission. Or cette distribution des vitesses est variable d'une source à l'autre et mal connue lorsque l'activité superficielle est élevée, ce qui doit être le cas dans ce type d'expérience (10 à 15 mCi/cm^2).

Pratiquement pour chaque source, cette distribution ne peut s'obtenir qu'à partir d'une déformation Doppler d'une raie d'électrons émis par un niveau de période connue.

Nous ne donnerons donc pas ici la formulation mathématique très complexe, puisqu'en pratique on est ramené à des mesures comparatives.

Dans le dispositif à géométrie cylindrique adopté (fig II - 8), le rapport : rayon source / rayon grille a été choisi de manière à atteindre des gradients de champ suffisamment élevés au voisinage de la surface de la source (gradient de 250 kV/cm pour 10 kV appliqués) pour détecter des périodes $\geqslant 3.10^{-11}$ sec. La figure II - 7 montre la déformation de l'épaule Doppler en fonction de la tension appliquée pour la raie L_2 (61,5 keV).

Le traitement des courbes a été effectué par une méthode voisine de celle de Novakov et coll. : après soustraction des fonds l'intensité des épaules Doppler en fonction de l'énergie a été portée en coordonnées logarithmiques, ceci pour différentes tensions.

Cette méthode a l'avantage de fournir des renseignements sur un grand nombre de raies d'électrons à la fois, en particulier aux basses énergies, elle complète la méthode de mesure par les γ émis en vol (paragraphe suivant) lorsque les rayonnements sont très convertis.

Les résultats ainsi obtenus sont donnés ensembles avec les valeurs mesurées par la méthode du paragraphe suivant.

-B-5-b-Mesures de vies moyennes par émission γ des atomes de recul en vol.

Le principe de la méthode a été brièvement exposé au chapître II. Comme dans toutes les expériences utilisant le recul des atomes après émission α, la décroissance de l'intensité γ lors du parcours effectué par les atomes dans le vide dépend de façon critique du spectre de vitesses de ceux-ci. Expérimentalement, deux sources ne sont jamais pareilles, et l'analyse n'est possible que si l'on connaît la distribution de vitesses pour chaque angle d'émission à partir de la source. Nous avons trouvé que l'expérience ne peut aboutir qu'à l'une des conditions suivantes :

a) Source infiniment mince : l'intensité est constante pour tous les angles et proportionnelle à Sin θ pour l'angle solide défini par θ .

b) Source épaisse : la matière active est uniformément répartie dans la masse de la source. L'intensité du rayonnement est affectée d'un facteur cos θ , comme pour la lumière émise par un corps noir. Le spectre de vitesses est en première approximation indépendant de l'angle.

c) Le spectre de vitesses est une fonction compliquée de l'angle d'émission du recul. Ceci se produit lorsque la qualité de la source est moyenne, que les impuretés co-volatilisées sont réparties non uniformément, etc. Dans ce cas, une expérience séparée et préalable doit fournir numériquement I_{recul} (θ , v), toutes les intégrations du calcul devant être effectuées numériquement par tranches $\Delta\theta$ et Δv .

Les essais ont montré que la condition a) est difficile sinon impossible à réaliser pour des sources aussi intenses

que celles nécessaires ici ($\sim$ 50 mCi/cm^2) et où la masse superficielle devrait rester inférieure à 1 μgr/cm^2.

La méthode c) par ailleurs est excessivement compliquée, comme nous le verrons plus loin à propos du contrôle des sources et de la mesure du spectre de vitesses des atomes de recul. Le choix s'est porté ainsi sur la méthode b).

Source : la partie chimique du traitement a été décrite au chapître III § B-1 ; Ce procédé peut donner des sources très pures pour des intensités moyennes. En pratique, lorsque la solution de départ est assez concentrée (10 mCi/cm^3 + impuretés importantes), conditions nécessaires à l'obtention de sources intenses, on n'arrive pas au degré de pureté suffisant par suite de la transformation des réactifs organiques en cours d'opération. Les impuretés majeures de la solution d'actinium sont surtout constituées par des traces de terres rares. Lors de la volatilisation sous vide des oxydes à partir d'un creuset de tantale, on obtient, dans une certaine marge de températures ($\sim$ 1900 à 2000°), la co-volatilisation du thorium et de certaines impuretés réfractaires. A l'aide d'une montée par paliers de la température, on obtient alors le départ contrôlé des descendants. Puis, on élève la température jusqu'au point où le thorium distille. La source est constituée de ce qui volatilise entre 20 % et à peu près 80 % du creuset, sans modification de la température.

Contrôle de la source :

Avant utilisation, on cherche à vérifier que la source possède les qualités voulues, c'est-à-dire, qu'elle convient au procédé "source épaisse" et à une épaisseur de l'ordre de grandeur du parcours de recul. Nous avons utilisé à cet effet un dispositif à déviation électrostatique figuré en III - 17 : deux plateaux circulaires portés à + V et - V fournissent le champ électrique homogène et comportent sur la périphérie une fente, située dans le plan médian, portée au potentiel moyen nul et définissant la

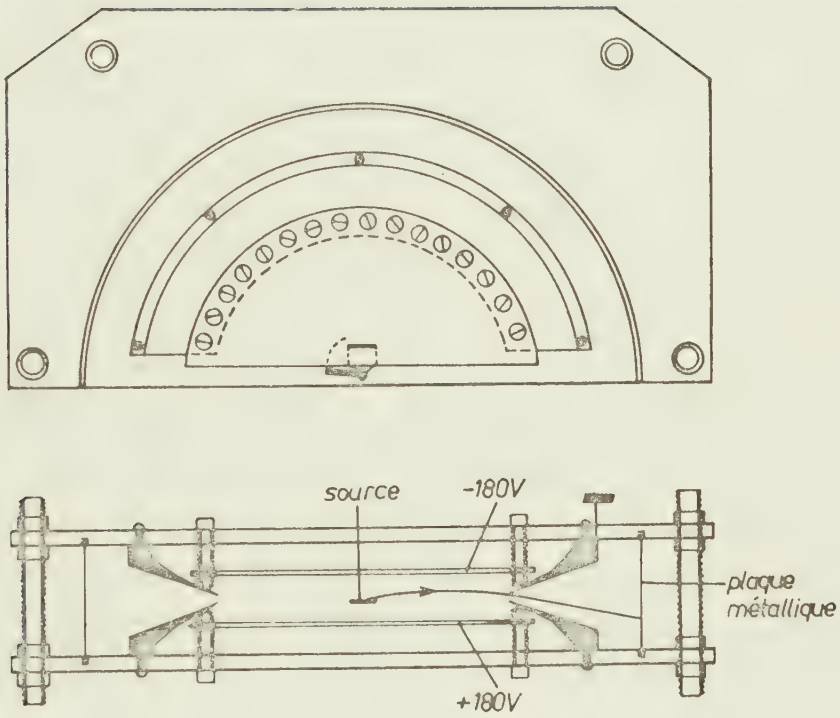


Fig. III -17

nappe déviée. Cette dernière est collectée sur une feuille métallique disposée en demi-cercle : les atomes de radium viennent s'enfoncer dans le métal par recul. Une émulsion photographique peut ensuite être plaquée sur cette feuille déroulée et, par une exposition suffisante, l'intensité des reculs recueillis par unité de surface se trouve traduite par un noircissement dont on établit la carte au densitomètre Vassy.

Il est facile de remonter de la densité photographique $I(x,y)$ à $\mathcal{J}(v,\theta)$, fonction de distribution des vitesses pour différents angles pourvu qu'il n'existe pas de spectre de charges compliqué, car il serait difficile d'analyser une superposition de spectres. Par ailleurs, la conservation d'une grande charge exige un vide élevé : si pour la charge 1, le libre parcours moyen est de l'ordre de 3.10^{-6} cm (P.T.N.), la section de choc d'un atome très chargé (charge n) varie approximativement comme n^2, et, compte tenu des dimensions données du déflecteur ($r = 10$ cm), il aurait fallu un vide de 3.10^{-6} mm Hg pour que les charges ne soient pas modifiées durant leur parcours dans le champ électrique. Ceci est incompatible avec le temps assez court disponible pour le contrôle de la source qui devait être utilisée rapidement afin que la partie la plus délicate des mesures puisse se faire avant que les descendants de ^{223}Ra ne commencent à s'accumuler. A cette fin, le contrôle de la source a donc été effectué au contraire avec un vide assez médiocre pour que tous les atomes multichargés soient ramenés à la charge la plus probable 1 ou 0 sur une distance faible vis à vis du trajet total, sans toutefois que la vitesse ni la direction ne soient trop modifiées. La pression choisie comme compromis était de 10^{-2} mm Hg.

La source utilisée pour les déterminations de vies moyennes a donné ainsi une distribution $\mathcal{J}(v,\theta) \sim \mathcal{J}'(v) \cdot \cos\theta$,

La précision sur $J'(v)$ étant médiocre, car il subsistait plusieurs distributions de vitesses pour des charges 0, 1, 2, 3, distributions élargies par suite du vide moyen, et partiellement superposées.

Distribution des vitesses :

Dans la désintégration $^{227}Th \longrightarrow {}^{223}Ra$, deux niveaux ont été étudiés précédemment par coïncidences retardées [Va (57)] : ceux de 50,2 et 286,2 keV. Ce dernier, par son alimentation simple, peut servir d'étalon interne de période ($T = 8.10^{-10}$ s). Afin de garder une certaine souplesse dans les calculs, nous avons pris une distribution de vitesses du type :

$$J(v) = \frac{1 + kv/V}{1 + k}$$

où V est la vitesse de recul maximum.

Si $k = \infty$, cette distribution correspond à une relation de parcours $R \sim E$. En fait, le facteur dominant pour un atome lourd se propageant dans un milieu de Z élevé est la diffusion coulombienne et la notion de trajectoire linéaire est simpliste : au bout d'un certain parcours, les diffusions altèrent profondément la direction du recul et le régime de diffusion, rapidement atteint, fait que la distribution d'intensité en cos θ, correspondant au cas b) s'établit bien avant que l'épaisseur de la source ne soit équivalente au "parcours moyen". Ceci justifie le calcul du paragraphe suivant.

Calcul d'interprétation :

Dans une direction θ donnée et pour une vitesse donnée, les facteurs qui entrent dans l'expression de l'intensité γ sont (voir figure III - 18):

$e^{\frac{-\ell\lambda}{v\cos\theta}} - e^{\frac{-\lambda(\ell+L)}{v\cos\theta}}$ probabilité d'émission dans la fente L

$\sin\theta\, d\theta$ angle solide

$\cos\theta$ facteur d'émission de la source

$\frac{1+kv/V}{1+k}\, dv$ fonction de distribution des vitesses

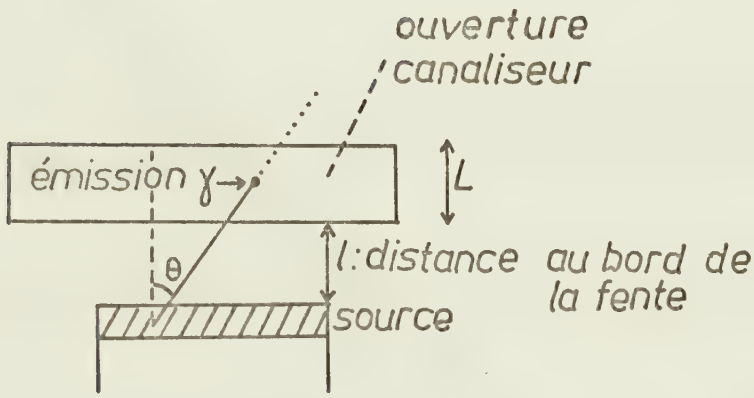


Fig.III - 18

A un facteur constant près (intensité de la source, ouverture angulaire de la fente du canaliseur, etc.) ceci donne :

$$I_\gamma = \int_0^{\pi/2}\int_0^{V} \sin\theta\cos\theta\left(e^{\frac{-\ell\lambda}{v\cos\theta}} - e^{\frac{-\lambda(\ell+L)}{v\cos\theta}}\right)\left(\frac{1+kv/V}{1+k}\right) d\theta\, dv$$

Pour exprimer plus commodément les résultats, nous utilisons des fonctions définies comme suit :

$$E_n(x) = \int_x^{\infty} E_{n-1}(-t)\frac{dt}{t} \quad \text{où} \quad E_0(-x) = e^{-x},\ E_1(-x) = -E_i(-x) \quad (*)$$

* Ne pas confondre E_1 (-x) avec certaines intégrales contenant l'exponentielle intégrale et souvent désignées par la même lettre.

qui, pour x grand, tendent vers les valeurs asymptotiques :

$$E_n(-x) \longrightarrow e^{-x} x^{-n}$$

On a ainsi :

$$I_\gamma = G(\ell\lambda/V) - G((\ell+L)\lambda/V) \quad \text{où}$$

$$G(x) = \frac{1}{1+k}\left(F_1(x) + \frac{k}{2} F_2(x)\right) \quad \text{avec}$$

$$F_1(x) = \frac{1}{2}(1+x)\, e^{-x} - x\left(1+\frac{x}{2}\right) E_1(-x)$$

$$F_2(x) = \frac{1}{2}(1-3x)\, e^{-x} + \frac{3}{2} x^2 E_1(-x) + x^2 E_2(-x)$$

Afin de les comparer aux courbes expérimentales, les fonctions E_2, F_1 et F_2 ont été calculées à l'Univac 1108 d'Orsay, ainsi qu'un jeu de courbes $I\gamma(\ell)$ pour k = 1/4, 1/2, 3/2 et 10 valeurs de λ *. La figure III- 19 montre l'aspect d'une famille de courbes pour λ donné : $I\gamma(1, k)$ et la figure III- 20 de même pour k donné : $I\gamma(1, \lambda)_k$**. Si on considère les erreurs expérimentales importantes que comporte cette méthode, on se rend

* Mes remerciements vont à Melle M.T. Commault qui a bien voulu nous programmer ces calculs.

** Afin de normaliser à G(o) =1, les fonctions portées en graphique sont $\frac{4(1+k)}{2+k}\, I\gamma$

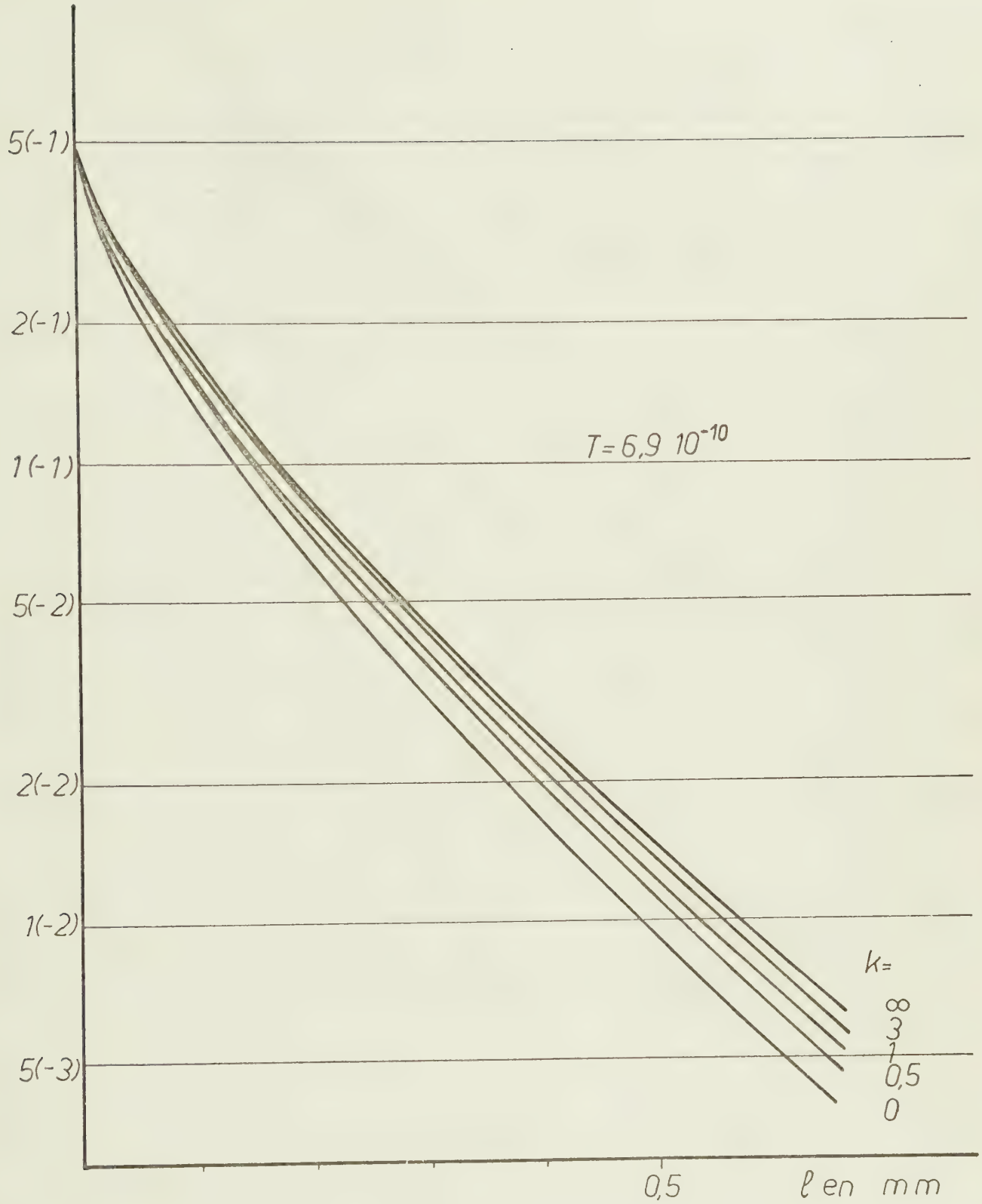


Fig. III – 19

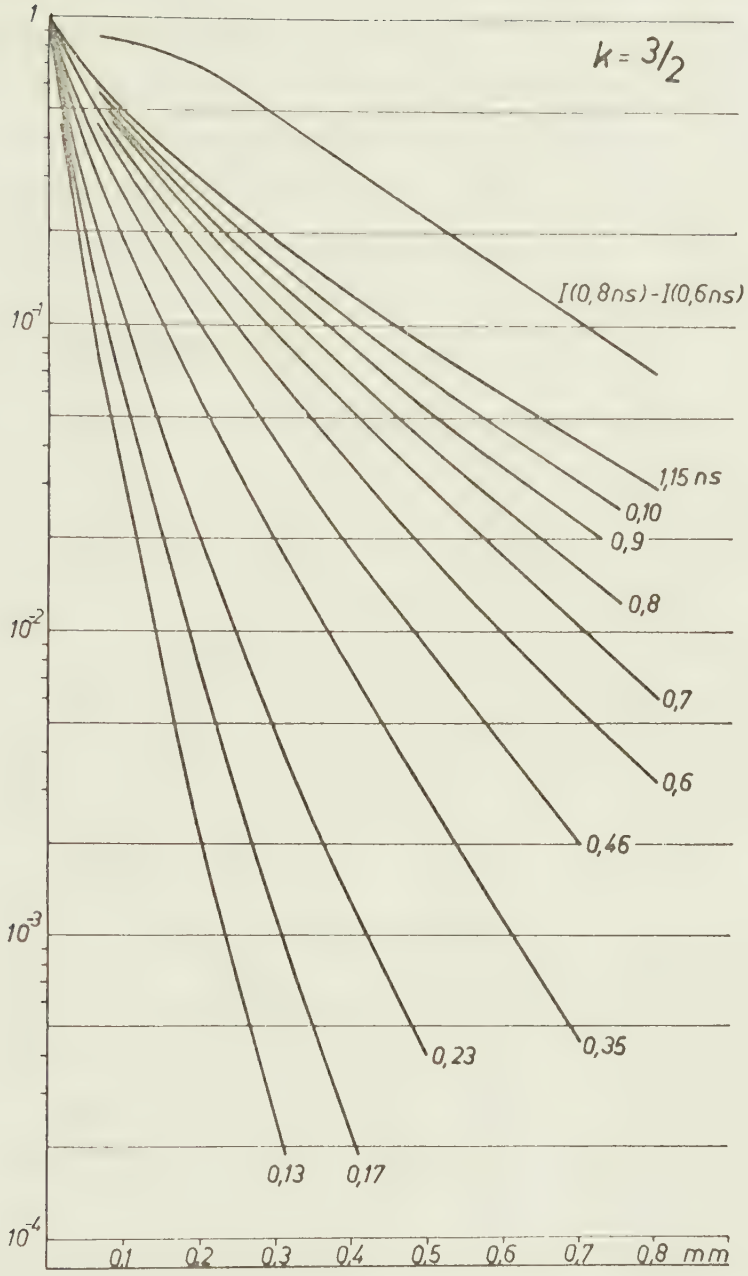

k = 3/2
1
10^-1
10^-2
10^-3
10^-4
I(0,8ns) - I(0,6ns)
1,15 ns
0,10
0,9
0,8
0,7
0,6
0,46
0,35
0,23
0,17
0,13
0,1
0,2
0,3
0,4
0,5
0,6
0,7
0,8 mm

Fig. III-20

compte que certains couples de valeurs k, λ donnent des courbes trop voisines pour que l'expérience permette de déterminer une valeur de k. En pratique donc, nous avons utilisé les rayonnements issus du niveau de 286 keV, de période connue, pour étalonner le dispositif. Ceci nous a amenés à utiliser la valeur k = 3/2 comme meilleur compromis. *

Procédure expérimentale :

La fente du canaliseur était constituée de deux lames de cuprotungstène de 6mm d'épaisseur et de longueur 6 cm noyées dans un cylindre de plomb. Côté source, la fente avait 0,3 mm, et côté détecteur 0,5 mm avec un prolongement de même section en cuivre et en aluminium, d'épaisseur 5 mm chaque. Le mouvement de déplacement de la source était obtenu par une vis micrométrique passant dans le vide par un joint Wilson. La position initiale de la source était rendue parallèle par des cales solidaires de la fente. (Figure II-9)

Malgré la masse superficielle élevée du blindage, (supérieure à 90 gr/cm^2), une fraction importante du rayonnement détecté provenait de diffusions et de "transparences", pour des énergies supérieures à 150 keV. L'expérience comprenait donc deux séries de mesures : la première avec la source nue, la deuxième avec la même source, mais recouverte d'aluminium (30 μg/cm^2) pour supprimer le recul dans le vide. Cette deuxième mesure fournit l'intensité des rayonnements détectés mais ne provenant pas des atomes en vol devant la fente.

A ce point il est nécessaire de mieux préciser les erreurs et les approximations de la méthode dont l'analyse exacte est très compliquée.

* Des mesures récentes de SCHULZ,MERDINGER etWACHTEL (comm.priv.) ont donné pour cette période : 0,6 ns $\pm$ 10 % au lieu de 0,8$\pm$1 ns que nous avons utilisée ici d'après des travaux antérieurs. Ceci peut entraîner une modification globale des périodes dans le même sens.

a) la figure III - 21 - a montre l'endroit où se trouve localisée l'origine du rayonnement γ si la source est couverte.

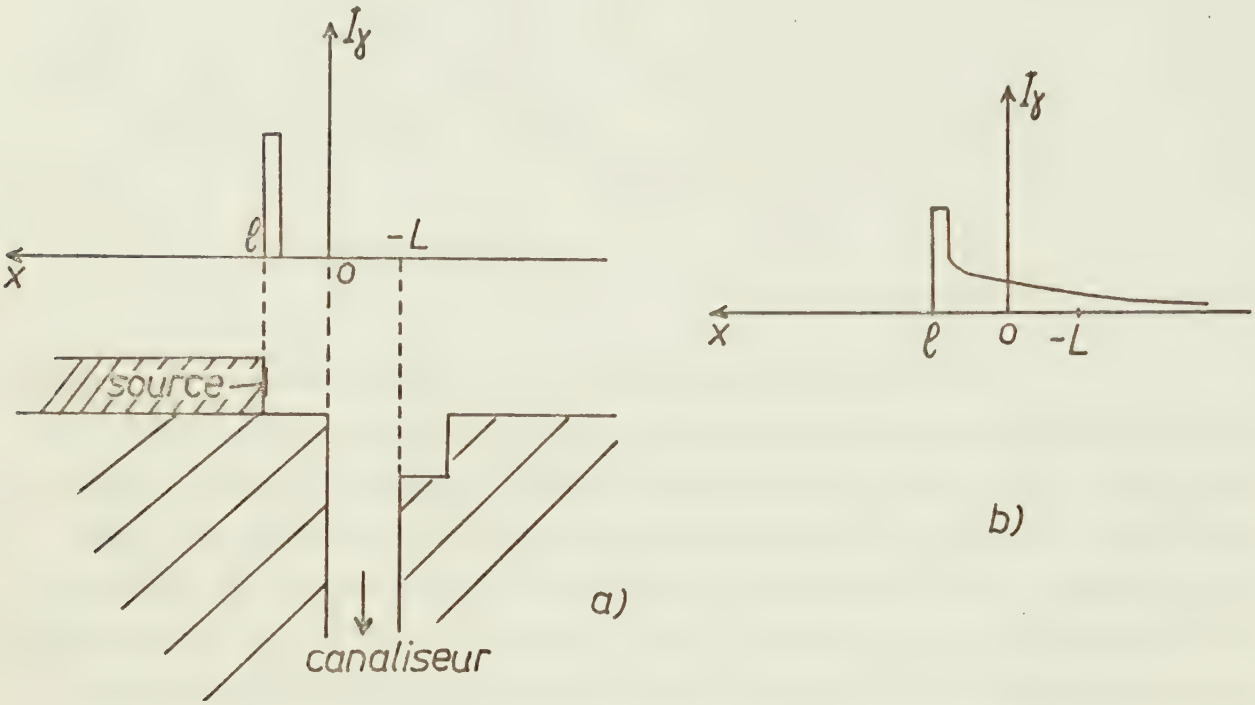


Fig. III-21

La figure III-24-b a trait à la source nue: une partie du rayonnement garde son origine à l'abscisse ℓ, mais la fraction des atomes qui reculent donne naissance à un rayonnement γ réparti sur toutes les abscisses $< \ell$, seule la tranche $x = 0$ à $x = -L$ étant détectée directement. Un calcul rigoureux exigerait la connaissance du coefficient de transmission $T(\ell, E)$ du rayonnement en fonction de la distance à la fente et de l'énergie. Si ρ est le taux de recul, l'effet désiré est ainsi, en se reportant au paragraphe précédent :

$M_1 = \rho . \mathcal{E} . I_\gamma(\ell)$ tandis que la somme des rayonnements parasites est :

$$M_2 = (1-\rho)\, T(\ell,E) + \rho \int_{\ell}^{0} I'_\gamma(x)\, T(x,E)\, dx$$

$$+ \rho \int_{-L}^{-\infty} I'_\gamma(-x+\ell)\, T(-x-L,E)\, dx$$

L'intensité de la source est prise ici égale à l'unité, et comme dans l'expression de $I\gamma$ on a $\int_0^\infty F_1\,dx = \frac{1}{6}$ et $\int_0^\infty F_2\,dx = \frac{1}{9}$ on normalise à $\int_0^\infty I'_\gamma \quad dx = 1$ en écrivant :

$$I'_\gamma = \frac{18(1+k)}{3+k}\, I_\gamma = \frac{18}{3+k}\left(F_1(x) + \frac{k}{2} F_2(x)\right)$$

Le coefficient ε de M1 est le coefficient expérimental de transmission par le canaliseur fente.

En pratique, une telle procédure s'est avérée trop lourde, par suite de l'imprécision que l'on a sur la valeur absolue de la fonction de transmission T(x, E) et sur celle de ε : non seulement l'identification des courbes expérimentales exige alors des courbes calculées $M_2(\lambda, 1, E, k)$ à quatre paramètres, mais encore plusieurs valeurs d'essai du rapport $\varepsilon / T(-\frac{L}{2}, E)$.

Dans une première série d'expériences nous nous sommes donc contentés de l'approximation où $M_2 \cong T\ (1,E)$. Les mesures de la source nue et de la source couverte correspondent ainsi à $[M_1 + M_2]$ et $[M_2]$. Comme M_2 est sous-estimé, un coefficient empirique a été utilisé pour corriger les résultats aux moyens des rayonnements issus du niveau du 286 keV (période 0,8 ns) et de ceux issus du niveau de 376 keV dont la période apparaît comme faible ($\leqslant$ 0,05 nsec) d'après la méthode de l'épaule Doppler des raies de conversion, méthode mieux adaptée aux périodes très courtes.

b) Certaines imperfections expérimentales de l'appareillage sont apparues lors du dépouillement des résultats : la précision sur la détermination des distances était moindre que celle escomptée. Le mouvement de translation de la source était transmis, nous l'avons dit, par une vis micrométrique dont l'axe passait à travers un joint Wilson dans le compartiment à vide. Ces

mouvements n'avaient pas la reproductibilité voulue par suite des frottements dans le passage à vide. Cette reproductibilité est importante à cause de la variation très rapide de $I\gamma$ (ℓ, λ), ceci surtout pour les photons d'énergie supérieure à 200 keV où M_2 devient important vis à vis de M_1. Des corrections de distance ont dû être évaluées pour chaque mesure, ce qui a été fait en se basant sur une sorte de test de continuité des courbes expérimentales $[M_2]$ et $[M_1 + M_2]$: pour $[M_2]$, la raie très intense de 236 keV doit donner une courbe continue, sans fluctuations, les erreurs relatives aux grandes distances devenant très faibles. La courbe $[M_1 + M_2]$ est ensuite corrigée en tenant compte de ce que les quantités $[M_1 + M_2] - [M_2]$ doivent aussi être continues et correspondre à une courbe calculée (période de 0,8 ns du niveau 286 keV). Les distances ainsi corrigées sont ensuite utilisées pour toutes les autres mesures.

Résultats expérimentaux :

D'après ce qui précède, la méthode des rayonnements γ émis en vol peut être améliorée du point de vue interprétation mathématique et précision expérimentale. Les résultats acquis dans les premières expériences ont fourni un certain nombre de vies moyennes avec une précision médiocre mais utile, étant donné que la théorie, dans son état actuel, a rarement besoin d'une précision élevée sur les probabilités de transition absolues. La figure III-22 donne comme exemple l'identification de la période de la transition de 330 keV pour lequel le taux de rayonnement parasite est important, et la figure III-23 celle de la transition de 113 keV, où, par suite de l'énergie plus faible, le rayonnement parasite est négligeable. Dans ces figures $[M_2]$ et $[M_1 + M_2]$ désignent, comme plus haut, les mesures avec et sans aluminium déposé sur la source, c'est-à-dire, sans recul et avec recul après émission α.

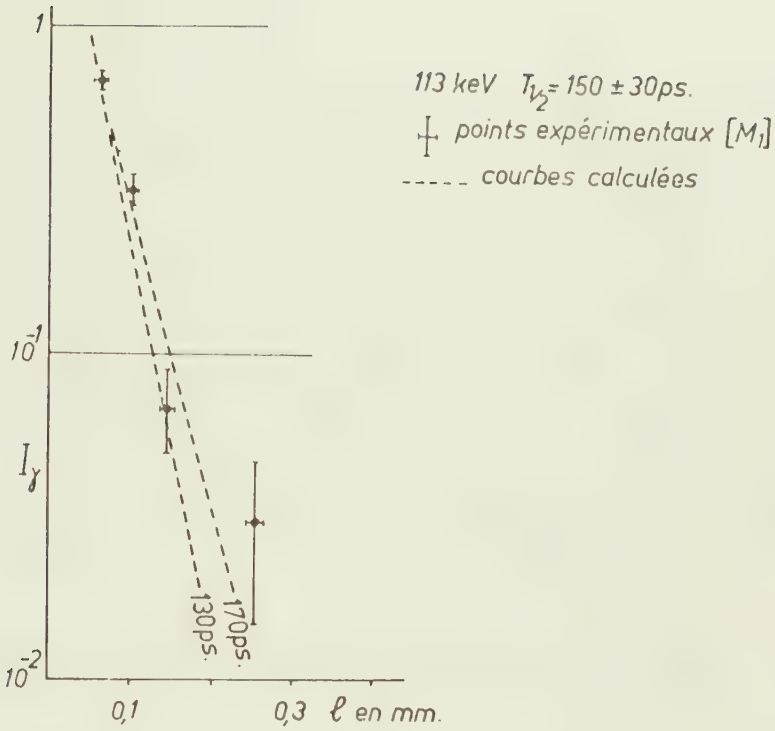


Fig. III-23

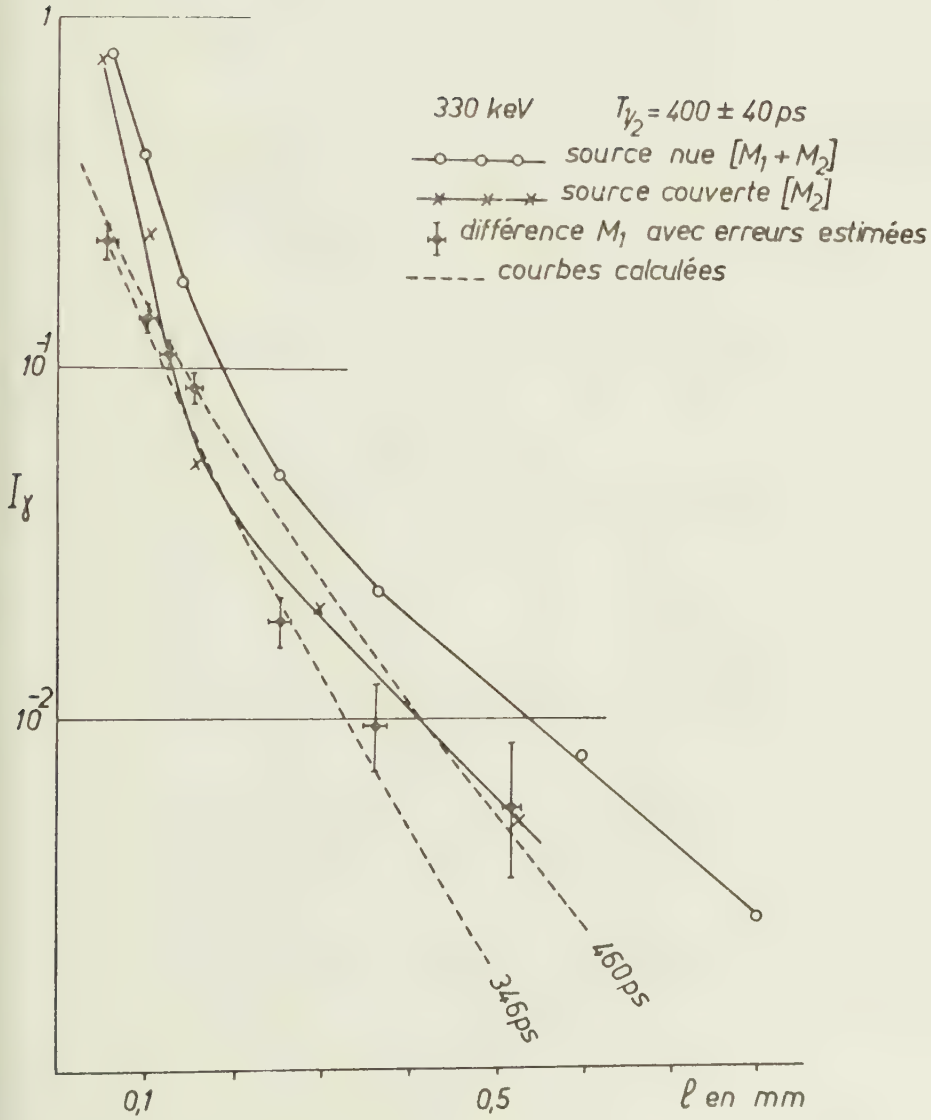


Fig. III-22

Nous donnons ci-dessous les résultats numériques obtenus en regroupant les transitions issues d'un même niveau.

Niveau de 376,4 keV. Les distances ayant été ajustées pour que le rayonnement de 314,6 keV donne des courbes Iγ (1) peu différentes pour M_1 et M_2, on vérifie que la transition de 296,6 keV, issue du même niveau a une période T < 30 ps.

Niveau de 369,3 keV. La seule transition assez intense est celle de 319,2 keV (Iγ - 6.10^{-4}) et donne T_{369} = 200 ± 50 ps.

Niveau de 342,9 keV. Les rayonnements les plus intenses donnent les limites :

292,7 keV : T < 70 ps.

219,0 keV : T < 50 ps

Niveau de 342,5 keV. Ce niveau a aussi une période courte :

342,5 keV : T < 50 ps

312,7 keV : T < 30 ps

281,5 keV : T < 80 ps

Niveau de 334,5 keV.

334,5 keV : T = 270 ± 50 ps

304,6 keV : T = 300 ± 50 ps

273,0 keV : T = 260 ± 50 ps (décomposition délicate avec les rayonnements des descendants de ^{227}Th)

210,7 keV : T = 300 ± 80 ps

204,3 keV : T compatible avec ∿ 300 ps après décomposition avec 205,0 + 206,2 keV.

Moyenne adoptée T = 280 ± 40 ps.

Niveau de 329,9 keV. Les transitions bien séparées sont :

329,9 keV : T = 400 ± 40 ps

300,0 keV : T = 450 ± 50 ps

43,8 keV : T = 420 ± 60 ps

Moyenne adoptée T = 420 ± 40 ps

Niveau de 286,2 keV. Le rayonnement de 236,0 keV a été pris comme étalon : 800 ps. Les autres rayonnements donnent :

286,2 keV : T = 870 ± 70 ps

256,3 keV : T = 730 ± 60 ps

Ces rayonnements étant intenses, ces résultats donnent une idée des erreurs inhérentes à l'analyse simplifiée utilisée.

Niveau de 280,3 keV. Le seul rayonnement intense est celui de 250,4 keV mélangé au rayonnement de 250,2 keV issu du niveau de 329,9 keV, les intensités relatives étant déduites des coefficients de conversion et des intensités K. Le rayonnement 250,2 + 250,4 keV, vers les grandes distances, tend vers la période du niveau 329,9.

Après soustraction, la composante résiduelle, très imprécise donne : $T_{280} \approx 100$ ps.

Niveau de 247,5 keV. Le rayonnement faible de 117 keV fournit un ordre de grandeur : $T \approx 150$ ps.

Niveau de 174,7 keV. La mesure, par méthode des γ émis en vol, qui tient compte de γ(113 E1) et γ(113 E2) respectivement dans les proportions 80% et 20% , donne :

$$T = 150 \pm 40 \text{ ps}$$

tandis que la mesure par méthode Doppler sur les raies L_2 et L_3 dûes en quasi-totalité à la composante E2, fournit :

$$T = 200 \pm 60 \text{ ps}$$

ce qui laisse à penser que les 2 transitions ont des vies moyennes comparables, éventuellement un peu plus courte pour la composante E1.

Niveau de 130,3 keV. Période mesurable uniquement par méthode Doppler :

100,3 keV : T = 300 ± 60 ps.

Niveau de 123,9 keV. Ce niveau est alimenté en partie par α ou par des voies rapides, tel le niveau de 376,4 keV (au total $\sim$ 1(-2)) et en partie par des niveaux ayant une période notable : 174,7 keV ($\sim$ 150 ps, 0,3 %), 329,9 keV ($\sim$ 400 ps, 3(-2)) et 334,5 keV (280 ps, 1, 2(-2)). Le rayonnement prédominant désexcitant le niveau 123,9 est celui de 94,0 keV. La courbe expérimentale, après soustraction des composantes rapides, laisse une courbe résiduelle présentant évidemment des erreurs notables dues à la décomposition. On en extrait :

$$T = (450 \begin{smallmatrix} + 100 \\ - 50 \end{smallmatrix}) \text{ ps.}$$

Niveau de 79,8 keV. Ce niveau possède une alimentation complexe : 4(-2) en α et niveaux de courte période : 342,9 et 376,4 keV ; 1,6(-3) par le niveau de 174,6 keV ; 2,2(-4) par le niveau de 280,3 keV ; 6(-3) par le niveau de 329,9 keV, et 7,3(-3) par le niveau de 334,5 keV. Les courbes de décroissances ont été calculées pour 100 - 200 et 300 ps. La décroissance obtenue par identification avec interpolation est de 240 $\pm$ 70 ps.

Niveau de 61,5 keV. Avec l'appareil décrit, le rayonnement très converti de 61,5 keV est obscurci par les X_K du tungstène du canaliseur. Une première expérience avec canaliseur de plomb a permis de comparer les rayonnements de 61,5 et de 62,5 keV, ce dernier, issu du niveau 123,9 devant avoir la même période que celui de 94,0 keV. On observe, avec peu de précision, que le rayonnement de 62,5 keV décroît plus vite que celui de 61,5 keV.

Ceci fixe la période aux environs de 600 ps ou plus avec une erreur cumulative difficile à fixer, ce niveau recevant encore des alimentations très complexes par les niveaux supérieurs ($\sim$ 20 %).

Niveau de 29,9 keV. Ce niveau n'est alimenté en α que par 2,9(-2) des transitions, les alimentations prédominantes ayant lieu par les niveaux 286,2 (9,5(-2)) ; 334,5 (6,5 (-31)) ; 280,3 (2(-3) ; 174,7 $\pm$ (1,9(-2)) et 123,9 (1(-3)). Cette alimentation complexe et la faiblesse de ce rayonnement très converti permettent seulement de dire que la période n'excède pas celle du niveau 286,2.

Conclusions. Cette méthode de mesures de vie moyenne présente comme défaut de dépendre étroitement de la qualité de la source et, par là, de ne pas être d'une grande précision. Par ailleurs, c'est une méthode globale qui ne peut distinguer les diverses alimentations d'un niveau. Si ces alimentations sont complexes, l'analyse le devient aussi et il faut alors tenir compte des bilans d'intensités déterminés par d'autres moyens. Par contre, l'avantage de cette méthode, qui peut être encore développée, est d'être assez rapide et de pouvoir traiter le cas de spectres complexes où une analyse par coïncidences retardées est impossible par suite du manque de résolution des détecteurs à scintillation rapides.

III-B-6- Schéma de niveaux.

Discussion des transitions classées par niveau d'origine.

Nous réunissons ici ensemble toutes les informations sur les transitions, car intensités, multipolarités et attributions proviennent souvent de l'ensemble des mesures de conversion, de spectrométrie γ directe et de coïncidences, ainsi que de considérations de compatibilité.

Etant donnée la complexité du schéma ,nous avons donné en détail toutes ces justifications expérimentales, non encore publiées, car elles forment la base indispensable à la construction du schéma "de proche en proche".

D'autre part le thorium 227 étant émetteur α, les valeurs expérimentales d'intensités et de périodes ont pu être obtenues en valeur absolue, ce qui permet de déduire beaucoup plus d'informations concernant le schéma.

Nous ne rappellerons pas, pour chaque transition, les différents modes d'observation, pour cela il suffit de se reporter aux tableaux III-a-b-c, mais nous les mentionnerons cependant dans les cas de transitions particulièrement complexes ou présentant un problème spécifique. De même il n'a pas été possible de faire figurer ici les erreurs pour chaque transition :

- les erreurs sur les intensités γ sont indiquées dans le tableau III-a.
- En ce qui concerne les électrons de conversions, d'une façon générale on peut affecter d'une erreur d'environ 5 % les raies les plus intenses du spectre (de 2.10^{-2} à 10^{-1}), d'environ 10 % les lignes d'intensités comprises entre 2.10^{-4} et 2.10^{-2}, de 20 % les intensités jusqu'à 5.10^{-5},

les erreurs pouvant aller jusqu'à 40 % pour les intensités plus faibles, ceci bien sûr pour des raies ne provenant pas de décompositions. Dans ce dernier cas, (voir la complexité des raies dans le tableau III-b), une erreur supplémentaire vient s'ajouter dans chaque cas spécifique. Cependant les rapports d'intensités de lignes γ ou d'électrons, souvent utilisés dans le schéma sont affectés d'une erreur moindre.

- D'autre part l'erreur indiquée pour A et D est l'erreur quadratique moyenne.

Afin de condenser ces informations sous un volume raisonnable, nous sommes obligés d'user d'un langage abrégé avec le code suivant :

- n désigne un niveau et est suivi de l'énergie.
- γ désigne tout ce qui concerne un rayonnement γ et précède soit une énergie, soit une intensité.
- t de même pour la transition totale.
- K, L_1, L_2, L_3 de même pour les lignes d'électrons et leur intensité.
- $\ast$ par convention ce signe désigne la coïncidence entre deux rayonnements.
- $(\gamma\gamma)$ indique que les informations reposent essentiellement sur les coïncidences $\gamma\gamma$.
  de même pour les signes (γ), (e^-), $(\alpha\gamma)$,
  et pour les cas de triple cascade dont le rayonnement intermédiaire n'est pas détecté car trop converti $(\gamma t\gamma)$.
  Ces signes ne seront utilisés que pour les cas non simples.
- [ ] Une intensité ou une multipolarité entre crochets indique que ces quantités n'ont pas été déterminées d'une façon directe mais par des déductions plus ou moins complexes, par exemple une multipolarité déduite de l'emplacement dans le schéma après vérification de cet emplacement par les coïncidences ; ou bien multipolarité déduite de l'invisibilité d'une raie d'électrons, etc.

- A et D : pour chaque niveau nous avons établi des bilans d'alimentation (A) et de désexcitation (D) qui, en principe devraient être égaux. Dans quelques cas ceci n'est pas vérifié et est dû en partie à la difficulté d'observer des rayonnements de faible énergie ou masqués par d'autres plus intenses. Le bilan réel utilisé dans les calculs a été pris égal à la plus grande des deux quantités A ou D pour un niveau. Si la différence est grande, on peut émettre une hypothèse vraisemblable sur le rayonnement non perceptible qui pourrait complèter le bilan.
- P Là où les renseignements expérimentaux le permettent, la probabilité de transition absolue a été exprimée en unités Moskowsky, le facteur statistique $S(j_i \llcorner j_f)$ étant inclus dans le calcul. Ces indications dépendent étroitement des intensités relatives des transitions qui désexcitent le niveau et des taux de mélange EZ ; le degré d'erreur a donc été indiqué par les signes conventionnels =, $\sim$, $\underset{\sim}{\sim}$ par ordre décroissant de précision.
- Enfin les énergies sont toujours données en keV, et cette unité ne sera pas répétée.

De même, toutes les intensités, dont l'unité ne sera pas mentionnée, sont exprimées par unité de désintégration α.

Le raisonnement qui conduit aux spins possibles des niveaux n'a pas été indiqué, car il fait intervenir un très grand nombre de transitions au moyen desquelles on établit des"fourchettes" dont la partie commune détermine le ou les spins possibles.

Les niveaux discutés sont ceux d'énergie inférieure à 590 keV pour lesquels il y a plusieurs sources d'information. Les niveaux supérieurs ne sont mentionnés que sur la figure III - 26, car les renseignements ne proviennent que de la spectromètrie directe, et sont, par là-même, incomplets.

Niveau 29,9.	$I = \frac{3}{2}+$	$A = 0,47 \pm 0,05$		$D \cong 0,46 \pm 0,08$
- 29,9 ($\longrightarrow$ n.0)		$\gamma = 1(-3)$		$t = 0,46$
$L_1 \cong 6(-2)$	$L_2 = 1(-1)$	$L_3 = 1,1(-1)$		M1 90 %
Niveau 50,2.	$I = \frac{3}{2}-$	$A = 0,18 \pm 0,015$		$D = 0,185 \pm 0,015$
- 50,2 ($\longrightarrow$ n.0)		$\gamma = 8(-2)$		$t = 0,14$
$L_1 = 1,4(-2)$	$L_2 = 1,4(-2)$	$L_3 = 1,7(-2)$	E1	P(E1) = 9,6(-4)
- 20,3 ($\longrightarrow$ n.29,9)		$\gamma = 5(-3)$		$t = 4,5(-2)$
			E1	P(E1) = 4,5(-4)
Niveau 61,5.	$I = \frac{5}{2}+$	$A = 0,28 \pm 0,01$		$D = 30 \pm 0,03$ (τ très approximatif)
- 61,5 ($\longrightarrow$ n.0)		$\gamma = 9(-4)$		$t = 9(-2)$
$L_1 = 9(-4)$	$L_2 = 3,5(-2)$	$L_3 = 3(-2)$	E2	P(E2) $\approx$ 39
- 31,6 ($\longrightarrow$ n.29,9)		$\gamma = 8(-4)$		$t = 2,1(-1)$
$L_1 = 4,8(-2)$	$L_2 = 5,3(-2)$	$L_3 = 5,4(-2)$	M1 93%	P(M1) = 2,9(-3)
				P(E2) = 227
Niveau 79,8.	$I = \frac{3}{2}-$	$A = (6,3 \pm 0,4)(-2)$		$D = (6,4 \pm 0,2)(-2)$
- 79,8 ($\longrightarrow$ n.0)		$\gamma = 2(-2)$		$t = 2,4(-2)$
$L_1 = 1,3(-3)$	$L_2 = 8(-4)$	$L_3 = 8,5(-4)$	E1	P(E1) = 5(-4)
- 49,9 ($\longrightarrow$ n.29,9)		$\gamma = 6(-3)$		$t = 1(-2)$ $(e^-, \gamma\gamma)$
$L_1 = 1(-3)$		$L_3 = 1,2(-3)$	E1	P(E1) = 3,4(-3)
- 29,6 ($\longrightarrow$ n.50,2)		$\gamma = 6(-5)$		$t = 3(-2)$ $(e^-, \gamma\gamma)$
		$L_3 \simeq 7(-3)$	M1 $\sim$90%	P(M1) $\sim$ 1,5(-2)
				P(E2) $\sim$ 120

pale transition 113,2 dont la conversion apparait comme inconciliable avec une multipolarité E1 même très anormale, d'autant plus que la conversion dans la couche L_3 ne devrait pas être affectée. Un mélange de transitions E1 et E2 rend compte des observations expérimentales (conversion globale, intensité γ). Ceci est confirmé par le fait que plusieurs transitions aboutissant à ce niveau montrent par coïncidences des rapports γ 94/γ 113 différents : n.174,7 $\frac{7}{2}$ - alimente en effet n.123,9 (γ caractéristique 94,0) tandis que n.174,7 $\frac{9}{2}$ + ne l'alimente pas. L'ensemble des informations montre que la différence d'énergie est très faible. En particulier, la ligne L_1 qui comprend des contributions des deux transitions de 113,2 n'est pas sensiblement élargie et les énergies obtenues par électrons (prédominance E2) et par γ (prédominance E1) sont les mêmes dans les limites des erreurs expérimentales.

- 124,5 (n.174,7 7/2 - $\longrightarrow$ n.50,2) $\gamma \approx 5(-5)$ ($\alpha\gamma$)

raies de conversion masquées [E2]

- 113,2 (n.174,7 7/2 - $\longrightarrow$ n.61,5) $\gamma = 5,6(-3)$ $t = 7,8(-3)$ ($e^-,\gamma,\gamma\gamma$)

$L_1 = [2(-4)]$ $(L_2, L_3) \ll (L_2, L_3)$ 113,2 E_2 E1 P(E1) = 2,5(-3)

- 95,0 (n.174,7 7/2- $\longrightarrow$ n.79,8) $[\gamma = 1,2(-4)]$ $t = 1,6(-3)$

$L_2 = 6,2(-4)$ $L_3 = 4,9(-4)$ E2 P(E2) = 48

- 50,9 (n.174,7 7/2- $\longrightarrow$ n.123,9) $[\gamma = (4 \pm 2)(-5)]$ $t = (1,5 \pm 0,5)(-3)$ ($e^-,\gamma t\gamma$)

$L_1 \sim 2,7(-4)$ $L_2 \sim 2,7(-4)$ $L_3 = 2,5(-4)$ M1 (94 ± 4) %

P(M1) $\sim$ 4(-4)

P(E2) $\approx$ 5 à 30

- 113,2 (n.174,7 9/2+ $\rightarrow$ n.61,5) γ 1,5(-3) $t = 1(-2)$ ($e^-,\gamma,\gamma\gamma$)

$L_1 = [2(-4)]$ $L_2 = 3,5(-3)$ $L_3 = 2,4(-3)$ E2

- 44,4 (n.174,7 7/2 - et 9/2 + $\rightarrow$ n.130,3) t évalué: 7(-3) ($\gamma t\gamma$)

$L_1 = 3(-3)$ $\sum e^- \sim (6 \pm 2)(-3)$ E1, (M1 +E2)

Niveau 123,9. $I = \frac{5}{2}$ - A = (2,7±0,25)(-2) D = (3 ± 0,4)(-2)

- 94,0 (⟶ n.29,9) γ = 1,4(-2) t = 1,6(-2)

L_1 = 8,2(-4) L_2 = 4,2(-4) L_3= 4,1(-4) E1 P(E1) = 3(-4)

- 73,7 (⟶ n.50,2) $\gamma \sim 1(-4)$ t = 3,2(-3) (e^-, $\gamma t \gamma$)

$L_1 \simeq$ 8,5(-5) L_2 = 1,3(-3) L_3= 1,1(-3) M1≈20% P(M1) ≈ 1,1(-4)

P(E2) ∼ 94

- 62,5 (⟶n.61,5) γ = 2(-3) t = 2,8(-3) (γ,$\gamma\gamma$)

E1 P(E1) = 1,9(-3)

- 44,1 (⟶n.79,8) [γ = 6,4(-5)] t = 8,5(-3) (e^-,$\gamma t \gamma$)

L_1 = 1,3(-3) L_2 = 2,6(-3) M1∼80% P(M1) = 1,3(-3)

P(E2) ∼ 140

Niveau 130,3. $I = \frac{7}{2}$ + A = (1,7±0,25)(-2) D = (1,9 ± 0,3)(-2)

- 100,3 (⟶ 29,9) γ = 9,5(-4) t = 9(-3) ($\gamma\gamma$,$\alpha\gamma$)

L_1 = 1,5(-4) L_2 = 3,4(-3) L_3= 2,6(-3) E2

-68,8 (⟶ 61,5) γ = 5(-4) t = 1(-2)

L_1 = 2,5(-3) L_2 = 2(-3) L_3= 1,4(-3) M1 85%

- 6,4 Ce rayonnement E1(n.130,3 → n.123,9) a été observé par diffraction cristalline, cependant sans précision sur l'intensité. L'attribution proposée ici est la seule possible (énergie, bilans). Par $\gamma t \gamma$, par exemple 212,7 * [6,4] * 94,0, une limite supérieure $t < 4(-4)$ est obtenue.

Niveaux 174,7 $I = \frac{7}{2}$ - et

174,7 $I = \frac{9}{2}$ + A = (2,6±0,2)(-2) D = (2,8±0,3)(-2)

Voir Fig.III-24 : Ce niveau a posé un grave problème quant à sa princi-

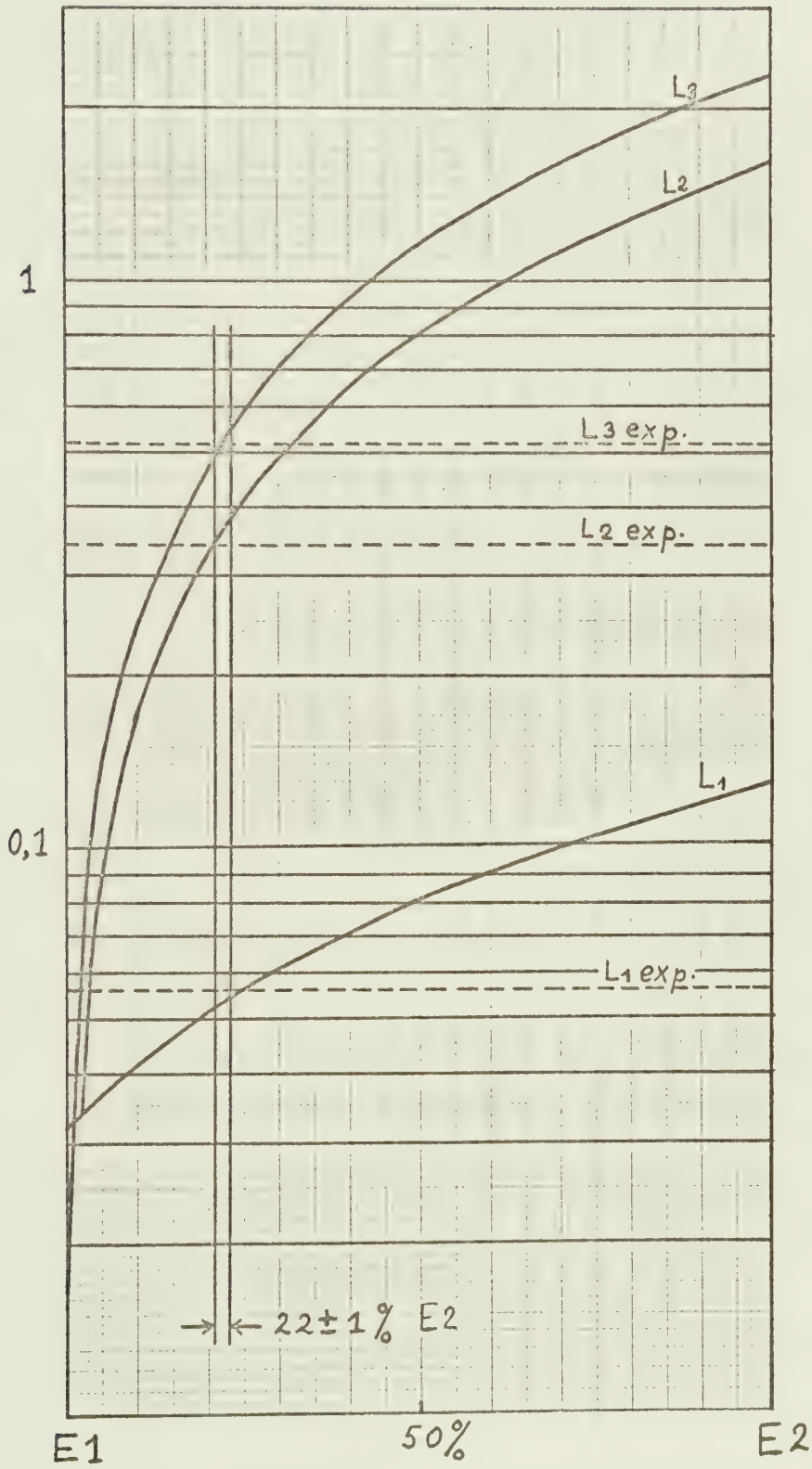


Fig. III-24

Niveau 234,9. $I = \frac{3}{2}+$ A = (1,5±0,15)(-2) D=(1,4±0,15)(-2)

- 234,9 (⟶ n.0) γ = 4,7(-3) t = 9,6(-3)

K = 5,4(-3) L_1 = 9,7(-4) L_2 ∼ 6(-5) M1 ∼ 100 %

- 205,0 (⟶ n.29,9) γ = 1,1(-3) t = 3,4(-3)

K = 2,4(-3) L_1 = 4,7(-4) L_2= 6,1(-5) M1 ∼ 100 %

- 184,7 (⟶ n. 50,2) γ = 3,4(-4) t=3,9(-3) (γ,γγ,αγ) [E1]

Note : énergie moyenne par e^- = 184,4 et ligne K trop forte : γ complexe d'après γγ.

- 173,5 (⟶ n.61,5) γ = 1,6(-4) (< 1(-4)(α-γ)(influence probable de Cθ)).

K en partie masqué ≈ 1,5(-4) M1 + E2

Niveau 247,5. $I = \frac{9}{2} - (\frac{7}{2}-)$ A = 3,3(-3) D imprécis : 2,6 à 3(-3)

- 123,6 (⟶n.123,9) [γ ≈ 2(-4)] (α-γ) [t ≈ 7(-4)]

[E2] P(E2) ≈ 80

- 117,2 (⟶ n.130,3) γ = 1,7(-3) t = 2,3(-3)

L_2 ≈ 3(-5) E1 P(E1) = 3,4(-4)

- 72,9 (⟶ n.174,7 7/2 - et 9/2 +) γ imprécis(KαPb) t ≥ 4(-4)

L_1 = 1,7(-4) L_2 ∼ 1,2(-4) E1 (dominant); (M1 + E2)

Niveau 280,3. $I = \frac{5}{2}+(\frac{3}{2}+)$ A =(6 ± 0,8)(-3) D = (5,2 ± 0,6)(-3)

- 250,4 (⟶n.29,9) [γ ∼ 1,4(-3)] t = 3(-3)

K = 1,3(-3) L_1 = 2(-4) M1 95 à 100 % P(M1) = 1,6(-3)

P(E2) < 1,7

Note : difficile à voir par α-γ à cause de γ 256 très intense. En γ-γ, déterminé par les coïncidences 96,1 * 250,4 , 96,1 * 218,8 , 162 * 250,4 et 96,1 * 218,8. Le partage avec 250,2 dans spectre direct est basé sur e^- et γγ.

- 218,8(⟶n.61,5) γ=7(-4) t = 1,9(-3)

K = 9,7(-4) M1 ≥ 95 % P(M1) = 1,5(-2)

P(E2) < 0,35

Note : Le partage γ 218,8 - γ 219,0 est basé sur les coïncidences 96,1 * 218,8 et 94 * 219,0 - 94 * 210,7. Difficile en α-γ où γ(218,8 + 219,0) reçoit de nombreuses contributions de niveaux supérieurs.

- 200,5 (⟶ n.79,8) γ = 2(-4) t = 2,2(-4)

E1 P(E1) = 3,3(-5)

Note : déterminé par γγ et γtγ dans la cascade 96,1 * 200,5 * (79,8 et 50,2)

Niveau 286,2. $I = \frac{3}{2}+$ A = 0,24 ± 0,01 D = 0,26 ± 0,02

- 286,2 (⟶ n.0) γ = 1,5(-2) t = 2,6(-2)

K = 7,7(-3) L_1 = 1,3(-3) L_2= 2,2(-4) M1 ∼ 90% P(M1) ∼ 6,5(-5)

P(E2) = 0,06

Note : conversion M1 anormale (voir paragraphe III-c-3).

- 256,3(⟶ n.29,9) γ = 7,3(-2) t = 9,5(-2)

K =7,1(-3) L_1=1,3(-3) L_2=4,7(-3) L_3=2,4(-3) E2 > 99% P(E2) = 2,5

P(M1) < 2,5(-5)

- 236,0 (⟶ n.50,2) γ = 1,3(-1) t = 1,4(-1)

K=6,1(-3) L_1=8,7(-4) L_2=2,6(-4) L_3=1,7(-4) E1 P(E1) = 5(-5)

- 225 (⟶ n.61,5) (?) γ ⩽ 5(-5) (par γ)

Attribution sur la base de l'énergie. Invisible en γγ et e^- [M1] P(M1) < 3(-7)

- 206,4 (→ n.79,8) γ ∼ 1(-4) t ∼ 1(-4)

E1 P(E1) ∼ 5(-8)

- 51,2 (⟶ n.234,9) [γ 3(-5)] t = 6(-4) (e^- seul)

L_1 = 4,5(-4) L_2 = 1(-4) M1 ∼ 100% P(M1) = 1(-3)

Niveau 315,8. I élevé Aα= (3,4 ± 0,4)(-4)

Une coïncidence très faible 141 * 113 permet d'envisager une transition vers 174,7. Une transition vers n.247,5, possible, (γ 68,2 à 68,6) serait masquée par la coïncidence intense 117,2 * 68,8 dûe à n.247,5→ n.130,3→ n.61,5. D'autre part, coïncidence 274,7*141 (n.590 → n.315,8).

Niveau 329,9. $I = \frac{1}{2}$ - (3/2-) A = (5,6±0,5)(-2) D = (6,5 ± 0,6)(-2)

- 329,9 (⟶ n.0) γ = 2,8(-2) t ∼ 2,8(-2)

K = 7,5(-4) L_1 = 9(-5) E1 P(E1) = 6,5(-6)

- 300,0 (⟶ n.29,9) γ = 2,2(-2) t = 2,24(-2)

K = 6,5(-4) $L_1 \sim$ 8(-5) E1 P(E1) = 3,3(-6)

Partage avec 300,3 par $\gamma\gamma$, 300,3 * 50,2 et K 300, K 300,3.

- 279,7 (⟶ n.50,2) γ = 6(-4) t ∼ 1,1(-3)

K = 6,9(-4) L_1 = 1,3(-4) M1 P(M1) = 1,4(-5)

Désaccord important avec les coefficients de conversion théoriques (voir paragraphe III-c-3).

- 250,2 (⟶ n.79,8) γ = 4,2(-3) t = 6(-3)

K=1,2(-3) $L_1 \cong$ 2(-4) L_2=2,4(-4) L_3=1,2(-4) M1 20% P (M1) = 2,7(-5)

P(E2) = 0,5

γ déduit de 250,2 * 79,8 et 296,6 * 79,8.

- 206,1 (⟶n.123,9) γ = 2,1(-3) t = 3,1(-3)

K=3,3(-4) L_1=6,7(-5) L_2=3,6(-4) L_3=2(-4) E2 P(E2) = 0,56

- 438 (⟶ n.286,2) γ = 2,3(-3) t = 4,6(-3)

L_1 ∼ 6 (-4) E1 P(E1) = 1,1(-4)

Niveau 334,5. I = $\frac{3}{2}$ + A = (8,3±0,4)(-2) D = (9,6 ± 1)(-2)

- 334,5 (⟶ n.0) γ = 1,1(-2) t = 1,5(-2)

K =3,7(-3) L_1=7(-4) L_2=1,5(-4) $L_3 \cong$2(-5) M1 70% P(M1) = 1,8(-3)

P(E2) ≅ 2

- 304,5 (⟶n.29,9) γ = 1,0(-2) t = 1,7(-2)

K=9(-3) L_1=1,7(-3) L_2=2,2(-4) L_3∼ 2,5(-5) E0+M1+E2 P(M1) = 1,6(-2)

(voir paragraphe III-c-3).

- 284,4(⟶ n.50,2) γ = 5(-4) t = 5,2(-4)

E1 P(E1) = 8 (-7)

- 273,0 (⟶n.61,5) γ = 5(-3) t = 6(-3)

K = 5,5(-4) L_1 = 5,5(-5) E2(M1 ⩽ 6%) P(M1) < 7(-6)

P(E2) = 2

- 254,7 (⟶ n.79,8) γ = 7(-3) t = 7,3(-3) (e^-,$\gamma\gamma$)

K = 2,65(-4) L_1 ∿ 3,5(-5) E1 P(E1) = 1,3(-5)

- 210,7 (⟶ n.123,9) γ = 1,1(-2) t = 1,2(-2)

K = 7,7(-4) L_1 = 8,5(-5) E1 P(E1) = 3,9(-6)

- 204,3 (⟶ n.130,3) γ = 2(-3) t = 3,1(-3)

K=3,4(-4) L_1=5,4(-5) L_2=3,6(-4) L_3=1,8(-4) E2 P(E2) = 0,6

- 99,7 (⟶ n.234,9) γ = 1,3(-4) M1 + E2 ($\gamma\gamma$)

- 54,2 (⟶ n.280,3) γ = 8(-5) t ⩾ 1,5(-3)

L_1 = 1,1(-3) M1 ⩾ 97% P(M1 = 2,2(-3)

P(E2) ⩽ ∿1

- 48,3 (⟶ n.286,2) γ = 1(-4) t = 3 (-2)

L_2 = 1,1(-2) L_3 = 1(-2) ∿E2 P(E2) = 95

Niveau 342,5. I = $\frac{3}{2}$ + ($\frac{1}{2}$ +) Vie moyenne globale ≲ 40 p s.

Bilan n.342,5 + n.342,9 : A = (3,6±0,4)(-2) D = (2,2 ± 0,3)(-2)

Le déficit apparent de la désexcitation doit être dû à des transitions de faible énergie impossibles à détecter en γ ou $\gamma\gamma$.

- 342,5 (⟶ n.0) γ = 4,2(-3) t = 5,3(-3)

K=8,9(-4) L_1=1,7(-4) L_2=7(-4) L_3≅5(-4) M1 45 %

- 312,7 (⟶ n.29,9) γ = 5(-3) t = 8(-3)

K = 2,5(-3) L_1 = 4,4(-4) L_2= 5,4(-5) M1 90 %

- 292,5 (⟶ n.50,2) γ = 7(-4) [t = 7,5(-4)] (γ,$\gamma\gamma$)

[E1]

- 262,8 (⟶ n.79,8) γ = 1(-3) t = 1,1(-3)

K = 3,8(-5) E1

Niveau 342,9. $I = \frac{5}{2}+$ Bilans : voir plus haut.

Ce niveau se différentie de façon caractéristique du niveau 342,5 par une alimentation à partir de n.460 par γ 117,2 et par ce qu'il possède une desexcitation vers n. 123,9 (coïncidence principale avec γ 94,0) tandis que n. 342,5 possède une désexcitation vers n.79,8 (γ 79,8 intense).

- 281,4 (⟶ n.61,5) γ = 1,6(-3) t = 2,9(-3)

K = 9,7(-4) L_1 = 1,7(-4) L_2 ∿ 3,4(-5) M1 84 %

- 219,0(⟶ n.123,9) γ = 3(-4) t = 3,2(-4)

K ∿ 2(-5) E1

Voir n.280,3 pour le partage γ 218,8/γ 219,0 dans le spectre direct.

- 212,7 (⟶ n.130,3) γ = 8(-4) t = 2,2(-3)

K = 1,05(-3) L_1 = 1,8(-4) L_2 = 3,5(-5) M1 90 %

- 168,3(⟶ n.174,7 +) γ ≅ 1,3(-4) [t=2,7(-4)] (γ,γγ)

Lignes de conversion entièrement masquées. Déterminé par 168,3 * 113 [E2]

- 108,0(⟶ n.234,9) γ = 7(-5) t ∿ 2,3(-4)

L_1 ∿ 1(-4) M1

- 62,7 (⟶ n.280,3) γ = 9(-5) t = 1,3(-3)

L_1 = 7(-4) L_2 = 2,3(-4) M1 ⩾ 95 %

- 56,6 (⟶ n.286,2) γ = 8,5(-5) (γ dir. et e^-)

Par γtγ et γγ, les résultats sont incohérents : par 56,6 * $\begin{cases}256\\236\end{cases}$ on a γ 56,6 ≅ 6(-5). Des cascades telles que 117 * [56,6] * 236 (voir schéma) donnent par ailleurs t 56,6 ≈ 1(-3) cependant que par conversion t 56,6 ∿ $\sum e^-$ ∿ 3(-3) :

L_1 = 9(-4) L_2 = 1(-3) L_3 = 8(-4) (M1 85 %)

Un autre rayonnement non identifié interfère probablement.

Niveau 350,5. $I \doteq \frac{3}{2} - (\frac{1}{2} -)$ $A = (1,5 \pm 0,1)(-2)$ $D \sim 4(-3)$ (voir γ8,0)

- 350,5 ($\longrightarrow$ n.0) $\gamma = 1,2(-3)$ $t \cong 1,2(-3)$

K = 2 à 3(-5) E1

Pas de mesure de vie moyenne, ce rayonnement étant rapidement obscurci par celui des descendants au cours de mesures un peu longues.

- 300,3 ($\longrightarrow$ n.50,2) [$\gamma = 1(-3)$] (par $\gamma\gamma$ 300,3 * 50,2)

K = 4,0(-4) M1 $\geqslant$ 70 %

- 64,3 ($\longrightarrow$ n.286,2) $\gamma = 1,5(-4)$ (par $\gamma\gamma$ 64,3*236,0-256,3-286,2).

[E1]

- 20,9 ($\longrightarrow$ n.329,9) Intensité difficile à préciser.

Uniquement détecté par conversion avec préaccélération. [M1 + E2]

- 8,0($\longrightarrow$ n.342,5) [E1]

Rayonnement uniquement détecté par γ mais l'efficacité de la diode est inconnue à cette énergie. L'attribution a été faite sur la base des énergies et peut expliquer le défaut de désexcitation de n.350,5. D'après la différence (A - D)n.350,5, t 8,0 pourrait être $\sim$ 1(-2). Comme n.350,5 n'est pas alimenté par γ, une cascade $\gamma t \gamma$ n'existe pas comme test.

Niveau 369,4. $I = \frac{3}{2} -, \frac{1}{2} -$ $A = (5,7 \pm 0,6)(-4)$ $D = (8,9 \pm 1)(-4)$

D'après la différence significative (D - A), ce niveau doit recevoir une alimentation supplémentaire non détectée de $\sim$ 3(-4) de faible énergie ou masquée par des rayonnements intenses.

- 369,4 ($\longrightarrow$ n.0) $\gamma = 6(-5)$ E1 (absence de e^-K)
- 319,2 ($\longrightarrow$ n.50,2) $\gamma = 3\ (-4)$ (M1 + E2)
- 289,6 ($\longrightarrow$ n.79,8) $\gamma = 7(-5)$

e^- K masqué - $\gamma\gamma$: 289,6 * 79,8 et 50,2 (M1 + E2)

- 134,5 ($\rightarrow$ n.234,9) $\gamma = 3(-4)$ [$t \cong 3,7(-4)$]

Ne peut être M1 + E2, ce qui aurait rendu visible une des raies de conversion. E1

Niveau 376,4. $I = \frac{5}{2}$ - $A = (2,2 \pm 0,2)(-2)$ $D=(2,55\pm0,25)(-2)$

Ce niveau a posé un problème spécial : deux transitions alimentent l'une n.0($\frac{1}{2}$ +) et l'autre n.130,3($\frac{7}{2}$ +). La parité de n.376,4 est négative à cause des transitions E1 γ 96,1 et γ 141,4 bien connues. Une des transitions vers $\frac{1}{2}$ + et $\frac{7}{2}$ + doit donc être E1, l'autre étant M2, ce qui est très rare dans les spectres complexes où des désexcitations de différentes multipolarités sont en concurrence. Le choix effectué ci-dessous est basé essentiellement sur le fait que pour ces deux transitions (γ 376,4 et γ 246,2) toutes les lignes de conversion sont masquées, mais que pour la seconde, le choix M2 rendrait la raie K perceptible, ce qui n'a pas été observé.

- $\sim$ 376,4 ($\rightarrow$ n.0) $\gamma \sim$ qqes 1(-5) ($\alpha\gamma$) M2
- 346,5 ($\rightarrow$ n.29,9) $\gamma = 1$ (-4)

K invisible E1

- 326,2 ($\rightarrow$ n.50,2) $\gamma = 5(-5)$ ($\gamma^*,\gamma\gamma$)

K $<$ 1(-5) M1 $<$ 40 %

- 314,9 ($\rightarrow$ n.61,5) $\gamma = 4,4(-3)$ $t \sim 4,5(-3)$

K $\cong$ 1,1(-4) E1

Partage dans spectre direct de 314,9 et 314,7 sur la base de 314,9 * (61,5 + 31,6 + 29,9) et 314,7 * (68,8 + 100,3) en tenant compte des alimentations supérieures de n.376,4 qui donnent (68,7 + 56,0)*314,9.

- 296,6 ($\rightarrow$ n.79,8) $\gamma = 4,9(-3)$ $t \sim 8,4(-3)$

K = 3(-3) L_1 = 5,2(-4) L_2=6,7(-5) M1 $\geqslant$ 95 %

- 252,6 ($\rightarrow$ n.123,9) $\gamma = 1(-3)$ $t = 2,1(-3)$

K = 8,5(-4) L_1 = 1,5(-4) M1

- 246,2 (⟶ n.130,3) $\gamma = 1(-4)$ E1 ($\gamma\gamma,\gamma$)
- 201,6 (⟶ n.174,7 -) $\gamma = 1,8(-4)$ [M1 + E2]
- 141,5 (⟶ n.234,9) $\gamma = 1,3(-3)$ $t = 1,6(-3)$

K ∿ 2(-4) E1

- 96,1 (⟶ n.280,3) $\gamma = 6(-4)$

$L_1 \leqslant 5(-5)$ E1

- 46,5 (⟶ n.329,9) $t = 7(-3)$ ($\gamma t\gamma$, e^-)

$L_1 \sim 0$ $L_2 \sim 2(-3)$ ∿ E2

- 42,2 (⟶ n.334,5) $\gamma = 4(-4)$ $t \sim 8,7(-4)$

E1 ($\gamma\gamma,\gamma t\gamma,\gamma$)

Niveau 405,0. $I = \frac{5}{2} - (\frac{3}{2} -)$ $A = (1,8 \pm 0,3)(-4)$ $D = (3,4 \pm 0,4)(-4)$

- 374,5 (⟶ n.29,9) $\gamma = 1,4(-5)$ [$t = 1,4(-5)$] [E1]
- 324,9 (⟶ n.79,8) $\gamma = 6(-5)$ $t = 9(-5)$

K = 3,5(-5) M1

- 281,0 (⟶ n.123,9) $\gamma = 7(-5)$ [$t = (1,1 \pm 0,3)(-4)$]

($\gamma\gamma$: 281,0 * 94,0) [M1 + E2]

- 230,4 (⟶ 174,7 -) $\gamma = 7(-6)$ [$t = 1$ à $1,7(-5)$]

[M1 + E2] ($\gamma\gamma$)

- 170,0 (⟶ n.234,9) $\gamma = 4(-5)$ [$t \sim 5\ (-5)$] [E1]
- 124,7 (⟶ n.280,3) $\gamma = 3(-5)$ [$t \sim 4(-5)$] [E1]
- 62,0 (⟶ n.342,9) $\gamma = 2(-5)$ $t = 2,8(-5)$ E1

($\gamma\gamma$: 61,5 - 62,0 - 62,5 * 281,4 avec soustraction des γ61,5 et 62,5).

Niveau 423,8. I élevé $A = (7 \pm 0,7)(-5)$ $D \geqslant 5(-5)$

- 362,4 (⟶ n.61,5) $\gamma = 5(-5)$

$K < 1\ (-5)$

Le niveau 423,8 a probablement un spin élevé, car il n'y a pas de

transition vers des niveaux de spin faible.

Niveau 432,4. $I = \frac{3}{2}$ - A = (2,2±0,2)(-3) D = (2,3±0,3)(-3)

- 432,4 (→ n.0) γ = 5(-5) [E1]
- 402,6 (→ 29,9) γ = 1,2(-4) [E1]
- 382,3 (→ n.50,2) γ = 6(-5) [M1 + E2] (γγ)
- 370,9 (→ n.61,5) γ = 7(-5) [E1] (γ,γγ)
- 352,6 (→ n.79,8) γ = 1,3(-4) t =1,7(-4)

K ∿ 3(-5) M1 > 60 %

- 308,4 (→ n.123,9) γ = 1,4(-4) t = 2,2(-4)

K ∿ 5(-5) M1 ∿ 80 %

- 102,5 (→ n.329,9) γ = 1,2(-5) t =(7 ± 2)(-5) (γγ)

L_1 = 3 (-5) M1 + E2

- 90,0 (→ n.342,5) γ = 3,4(-5) t = 4 (-5) (γγ)

L_1 < 2,5(-5) E1

- (82) en αγ, l'énergie apparente de γ 352,6 est abaissée. Il est possible que ceci soit dû à une alimentation de n.350,5 par n.432,4 et ainsi à un mélange γ 352,6 + 350,5 avec t 82 ⩽ 1(-3)

- 56,0 (→ n.376,4) γ = 5(-5) t = 8,5(-4)

L_1 ∿ 5(-4) L_2 ⩽ 5(-5) M1

Niveau 442,5.

Ce niveau avait été introduit par Davidson et Connor [DA (68)] pour expliquer γ 112,6(→ n.329,9), γ 108(→ 334,5) et γ 442,5(→n.0). Par γ et γγ on trouve que γ 442,5 < 6(-7), γ 112,6 <6(-6) et γ 108,0 placé sur n.342,9. Néanmoins nous avons conservé ce niveau à cause des transitions suivantes :

- 318,5 (→ n.123,9) γ = 6(-5) K < 4(-5) (γγ,γ*)
- 268,0 (→ n.174,6) γ = 1(-4) K ∿ 5,5(-5) (γγ,γ,e⁻)

(M1 + E2)

- 162,1 (⟶ n.280,3) γ = 8(-5) ($\gamma\gamma$)

- 99,5 (⟶ n.342,9) γ = (2,3 ± 0,8)(-5) ($\gamma\gamma$)

Niveau 445,1. I = $\frac{7}{2}$ + Pour n.442,5 + n.445,1 : A = (1,7±0,2)(-3)

D = (2,5±0,3)(-3)

- 415,2 (⟶ n.29,9) γ = 1,8(-5) [E2]

- 383,6 (⟶ n.61,5) γ = 5(-4) t = 7(-4)

K = 1,3(-4) M1 60 %

- 314,7 (⟶ n.130,3) γ = 3,5(-4) t ∿ 6(-4)

K et L_1 mélangés à ceux de t.314,9 (E1). Partage basé sur le partage γ par 314,9 * 61,5 et 314,7 * 100,3 et 68,8 et K absolu :

K (314,7) = 1,9(-4) M1 > 93 %

- 270,6 (⟶ n.174,7 -) γ = 8(-5) [E1] (γ,$\gamma\gamma$)

- 197,7 (⟶ n.247,5) γ = 1(-4) t = 1,1(-4)

K faible E1

- 110,6 (⟶n.334,5) γ = 5 (-5) t = 5(-4)

L_2 = 2,4(-4) L_3 = 1,6(-4) E2

- 68,7 (⟶ n.376,4) Cette transition a été difficile à localiser parceque elle est presque toujours superposée au γ 68,8 observé toutes les fois où un niveau supérieur aboutit directement ou indirectement à n.130,3. Par exemple 314,9 * 68,8 et 314,9 * 100,3 donnent γ 68,8/ γ 100,3 double du rapport normal, ce qui excède la perturbation pouvant être apportée par C_0 . Par contre 68,7 * 296,6 n'est pas accompagné de γ 100,3, ce qui localise γ 68,7 de façon certaine.

γ 5,7(-5) - absence de L_1, L_2, L_3 visibles : E1

- 40,2 (⟶n.404,9) γ = 2(-4) [t = 4,5(-4)] [E1]

γ visible dans spectre direct, pas de conversion perceptible, $\gamma\gamma$ possible mais trop faible.

Niveau 460,2. $I = \frac{7}{2}-, \frac{5}{2}-$ $A = (1,8 \pm 0,2)(-3)$ $D = (9 \pm 2)(-4)$

- 399 (→ n.61.5) $\gamma = 2(-5)$ (attribution par énergie)
- 285,5 (→ n.174,7 -) $\gamma = 5(-4)$ [t ∿ 8(-4)]

L'intensité et l'attribution proviennent de 285,5 * 113,2 et 285,5 * 94,0 (rapport γ 113,2/γ 94,0 très différent pour n.174,7 - et n.174,7 +) ainsi que α460,2 * γ 285,5 et α 460,2 * γ 94,0 où intervient t 285,5 : [M1 + E2]

- 117,2 (→ n.342,9) $\gamma = 1(-4)$ [t = 1,4(-4)] E1

Par comparaison de 117,2 * (212,6 + 219,0 + 281,4) avec (197,7+267,3)*117,2 on obtient E_γ (117,2 de n.460,2) - E_γ (117,2 de 247,5) = 0,06 ± 0,02.

- (84) Nous donnons une limite γ 84 < 1,4(-5) à cette attribution de Davidson [DA (68)] sur la base γγ.

-[∿ 15] (→ n.445,1) Ce rayonnement E1 pourrait expliquer en partie $(A-D)_{460,2} \gg 0$ et $(A-D)_{445,1} \ll 0$, mais serait masqué par X L_β. A priori ne peut être très intense, car cela provoquerait en α - γ un déplacement apparent de E_α coïncidant avec les γ de n.445,1.

Niveau 514,6. $I = \frac{7}{2} \pm, \frac{9}{2}+$ $A = (2,1 \pm 0,2)(-4)$ $D = 5$ à $8(-5)$

- 339,8 (→ n.174,7-) $\gamma = 1,4(-5)$ (340 * 113,2)
- 267,0 (→ n.247,5) $\gamma = 2,5(-5)$ (267 * 117,2)
- 171,4 (→ n.342,9) $\gamma = 1(-5)$ (171,4 * 281,4)

Possible sur la base de l'énergie seule :

- 179,5 (→ n.334,5) $\gamma = 2(-5)$ (γ)

Niveau 538. $A = (1,7 \pm 0,15)(-4)$ $D \sim 2(-5)$

La majorité de la désexcitation est non détectée et est donc probablement de faible énergie vers des niveaux voisins.

- 289,5 (→ n.247,5) $\gamma \sim 1,6(-5)$ (289,5 * 117,2)

Niveau 590. I élevé A ∿ 2,7(-5) D ≈ 6(-5)

- 466,5 (⟶ n.123,9) γ ≐ 5(-7)

- 274,7 (⟶ n.315,8) intensité imprécise, car on observe 274,7 * 141,0 et le pic γγ correspond à γ274,7 × γ 141,0/ D.315,8 et le bilan de ce niveau est mal connu. Si on accepte l'attribution de 141 * 113,2 à n.315,8 on a γ 274,7 ≈ 1,5(-5).

Transitions posant des problèmes spéciaux.

- ∿ 24. Cette énergie se retrouve avec toutes les coïncidences intenses de γ 50,2 (tel 236,0 * 50,2). Interprêté comme rayonnement γ, il faut supposer l'existence d'un niveau intermédiaire entre n.50,2 $\frac{3}{2}$ - et n.0 $\frac{1}{2}$ +, c'est-à-dire n.∿24($\frac{1}{2}$ -) avec γ 24 ∿ 5(-4). Mais il faut remarquer que cette énergie coïncide avec Kα(Sn). On ne peut pas éliminer l'hypothèse d'un rayonnement secondaire par suite de la présence du pré-amplificateur interne refroidi comportant des soudures Sn - Pb.

- 27,5 γ = 2(-4) non classé (γ)

- 64,7 Dans le spectre direct, on observe une raie complexe d'énergie moyenne supérieure à γ 64,4 (qui est coïncidant avec γ 236,0 - 256,3 - 286,2). La deuxième composante de la raie complexe est non classée.

- 75 γ ≈ 2(-4) (γ,L_3).
Attribution n.405 ⟶ n.329,9 exclue par absence de 75 * 329,9.

- 138,3 γ = 2,4(-5) (γ) L_1,L_2 masqués - non classé .

- 150,3 ± 0,4 γ = 5(-5) (γ) Toutes les lignes de conversion sont masquées. Pourrait être attribué à n.280,3 ⟶ n.130,3. Voir discussion de la bande fondamentale.

- 164,9 γ ∿ 1,4(-4)(γ) Par α - γ, ce rayonnement apparait très faiblement, et donc avec peu de précision, légèrement au-dessus du niveau 286,2 et devrait nécessiter l'introduction dans le schéma d'un nouveau niveau, faiblement alimenté en α, se désexcitant

vers n.130,3 ou n.123,9. Par $\gamma\gamma$, le choix n'est pas concluant.

- 181,1 $\gamma \sim 2(-5)$ (γ) non classé.
- 223,7 $\gamma \sim 2(-5)$ (γ) non classé.
- 225,5 raie complexe dans spectre γ avec $\gamma \sim 5(-5)$ et $K \sim 6(-5)$ avec $E = 226,1$. Plusieurs emplacements possibles,en particulier pour une composante γ 224,7 (n.286,2→n.61,5) difficile à détecter par $\gamma\gamma$ et $\alpha\gamma$.

L'ensemble des résultats est présenté dans les schémas des figures III-25 (niveaux de basse énergie)et III-26 (niveaux de haute énergie) sous la forme de tableaux à double entrée suivant le code:

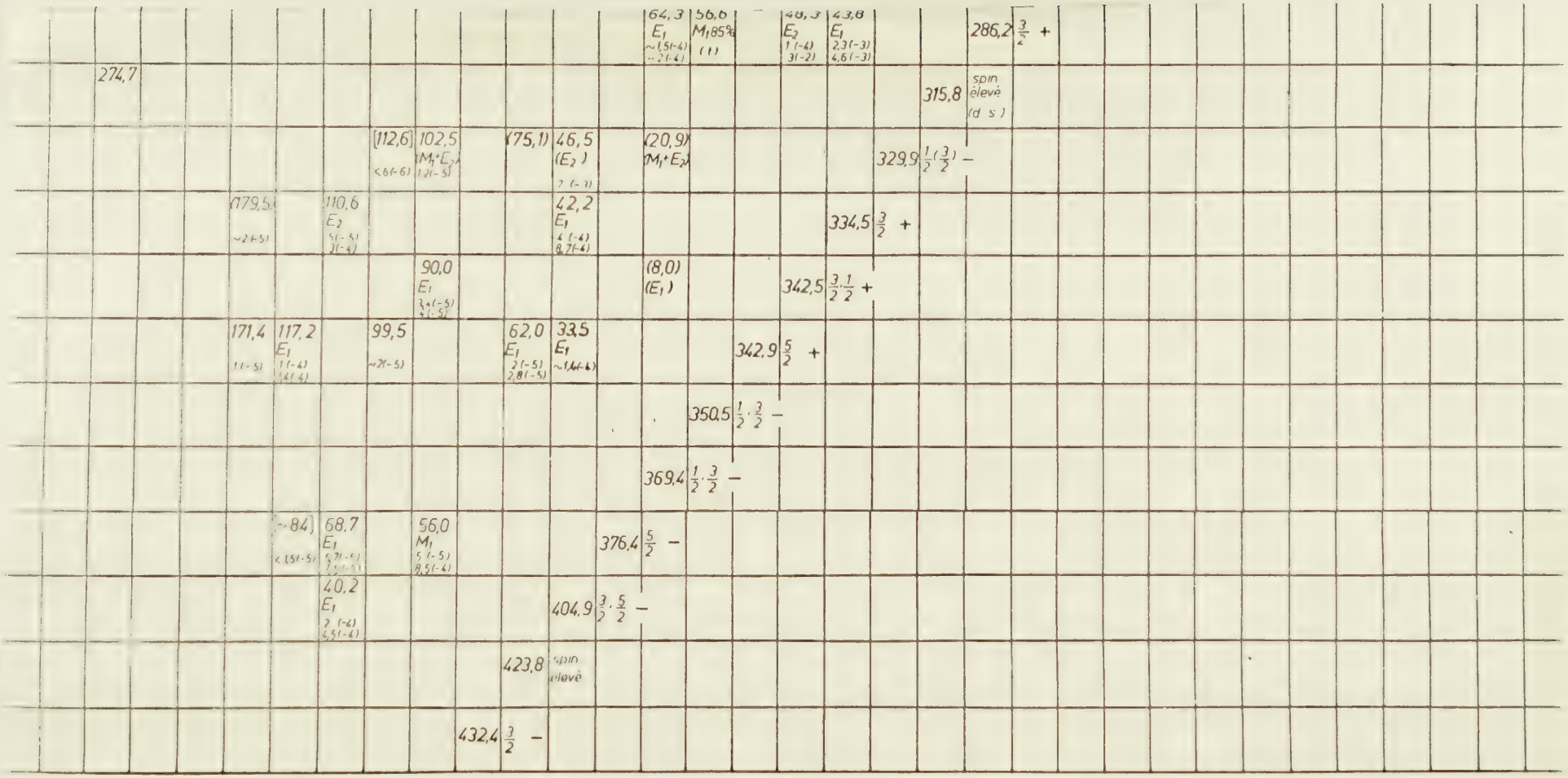
- les énergies des niveaux de départ sont figurées sur la ligne horizontale supérieure avec leurs caractéristiques: spin, parité, alimentation α, facteur d'empéchement F et 1/F.
- les désexcitations de chaque niveau vers les niveaux d'arrivée (figurés sur la ligne diagonale) sont représentées sur une ligne verticale issue du niveau de départ.
- dans chaque cas ont été portées , dans l'ordre suivant:

E_γ
multipolarité
I_γ
$I_{transition}$

(dans le cas de mélange M_1+E_2, il n'a été porté que le pourcentage de $\gamma(M_1)$ vis-à-vis de l'intensité γ totale).

notes: (t) signifie:voir le tableau des pages précédentes.
(d.s.) signifie:voir discussion du schéma.

| | | |



SCHEMA DES NIVEAUX DE ^{223}Ra (partie basses énergies)

notes (t) discussion tableau
(d s) discussion schéma

Fig. III - 25

Figure III - 25

Schéma général

1/2 à 5/2	1/2 à 5/2	1/2 à 5/2	1/2 à 5/2	1/2 à 5/2	1/2 à 5/2	1/2 à 5/2	1/2 à 5/2	1/2 à 3/2	1/2 à 5/2	1/2 à 5/2	5/2 à 7/2	1/2 à 5/2	3/2 à 5/2	3/2 à 5/2	1/2 à 5/2	5/2	1/2 à 5/2	1/2 à 5/2	1/2 à 5/2	1/2 à 3/2	1/2 à 5/2		1/2 à 5/2		π +
1/2 à 3/2	3/2	1/2 à 3/2	3/2	3/2	1/2 à 5/2	3/2	3/2	1/2 à 5/2	1/2 à 3/2	1/2 à 5/2	5/2	1/2 à 3/2	3/2	3/2	3/2	3/2	3/2	1/2 à 3/2	1/2 à 3/2	1/2 à 3/2	3/2		1/2 à 5/2		π −
1 (-6)	2 (-6)	5 (-7)	2,3(-6)	1,5(-6)	3 (-6)	6 (-6)	3,1(-5)	1 (-5)	3 (-6)	1,2(-5)	8 (-6)	1,3(-5)	3 (-5)	6,2(-5)	2 (-5)	6 (-5)	2 (-5)	2 (-5)	1 (-5)	2,3(-5)	<2(-6)	2,5(-6)	2 (-6)	Iα	
1025	1020	1015	1000	971,2	943	926,3	908,0	905	~891	~882	878,8	867,3	858,6	842,2	826,0	823,1	817,5	803,5	~792	787,0	784,2	~730	~713	E keV	I π
1025 1,5 (-7)	1020 2 (-7)	1015 1,5 (-7)	999,8 3 (-8)	971,2 1 (-7)		927 7 (-8)	908,2 2 (-5)		891 2 (-7)			867,5 7 (-7)	858,8 2,4 (-6)	842,2 6 (-6)	826,0 2 (-6)	823,1 2,5 (-5)	818,0 3 (-7)	803,5 9,7 (-6)	792,6 4 (-7)	787,4 9 (-7)	784,2 1 (-6)			0	1/2 +
995,0 7 (-8)	990 3 (-7)		970 3 (-7)	941,6 7 (-7)		896,1 1,1 (-6)	878,2 1,2 (-6)			854 7 (-7)	848,7 6 (-7)	837,3 4 (-6)	828,5 1 (-7)	812,2 2,7(-5)		792,6 3 (-7)	787,4 4 (-7)			756,9 ~8 (-5)	754,0 1 (-6)			29,9	3/2 +
					893 1,3 (-7)	876,2 1,6 (-6)	857,3 6 (-7)						(807,5) (5 (-7))		775,3 1,5(-5)	773 1,3 (-6)		754,0 1 (-6)		(738,4) (7 (-7))	734,4 1 (-6)		553,1 6 (-7)	50,2	3/2 −
	958,7 6 (-7)		938 1 (-7)	910,0 1,5 (-7)							818,0 1 (-6)		796,8 8 (-6)	780,5 3,2 (-6)	766,3 3 (-6)		756,9 ~2 (-6)				722,1 3,8(-6)			61,5	5/2 +
			920 1,2 (-7)		863 2 (-7)	846,7 1,5(-6)	828,5 2 (-6)							762,2 2,6 (-6)	746,4 1 (-6)			723,6 2,7 (-6)		707,2 4 (-7)			632,3 1,4 (-6)	79,8	3/2 −
													735,5 1,6 (-6)	(718,5) (3 (-7))										123,9	5/2 −
											748,5 3 (-6)													130,3	7/2 +
											704,3 8 (-7)													174,7	9/2 +
																(648,5) (2 (-7))								174,7	7/2 −
						692,0 4 (-7)					644,2 5 (-7)			607,5 1,8 (-6)		(589) 6 (-7)				552,4 2,3 (-6)				234,9	3/2 +
																								247,5	9/2 (7/2) −
													578,5 1,3 (-6)											280,3	5/2 (3/2) +
							621,4 6 (-7)							556,5 2,2 (-6)		537,0 1,1 (-5)								285,2	3/2 +
																								315,8	élevé
				641,0 2 (-7)		(596) (1 (-7))										493,1 5,5 (-6)				(457) [illegible]				329,9	1/2 (3/2) −
													524,3 1,5 (-6)	507,4 4 (-6)				569,0 6 (-6)		(452,7) 0,5 (-6)				334,5	3/2 +
													516,4 1,8 (-6)											342,5	3/2, 1/2 +
																(480) (3 (-6))								342,9	5/2 +
						575,7 1,3 (-6)																		350,5	1/2, 3/2 −
								(535) (1 (-6))																359,4	1/2, 3/2 −
			623,8 1,6 (-6)										(482) (0,4 (-6))											376,4	3/2 −
																								405,0	3/2, 5/2 −
																								423,8	élevé
																								432,4	3/2 −
																								445,1	7/2 +
							(448) (1,5 (-6))																	460,6	5/2, 7/2 −

Fig. III - 26 :SCHEMA DES NIVEAUX DE ^{223}Ra (partie hautes énergies)

III - C - Discussion du schéma de niveaux

Lorsque nous avons abordé l'interprétation du schéma de niveaux de ^{223}Ra, on pouvait penser raisonnablement que la connaissance des spins et parités des niveaux, d'un grand nombre de vies moyennes et des multipolarités des transitions ouvrait la voie à des tests de modèles et à la confirmation d'hypothèses faites précédemment.

Il en fut autrement. Au cours des deux dernières années surtout, il y a eu un renouvellement presque complet des données expérimentales, ce qui nous a amené à reconsidérer un certain nombre d'hypothèses qui avaient été formulées sur la base d'un modèle simple : en particulier les probabilités de transition échappent à toute règle trop précise. Néanmoins certaines similitudes ont permis de considérer des groupes de rayonnements ayant des caractéristiques voisines comme étant reliés aux niveaux d'une même bande rotationnelle sans pour cela être trop exigeant sur les intensités relatives des rayonnements. On peut penser que le ^{223}Ra n'est pas doté d'une déformation très grande et que par là K devient un nombre quantique "mou". Dans ce qui suit, nous essayerons de justifier les choix qui ont conduit à adopter en première approximation le groupement des niveaux en bandes construites sur des configurations dominantes.

C - 1 - Spin de l'état fondamental de ^{223}Ra

Le spin de l'état fondamental de ^{223}Ra peut être déduit d'une façon complexe de l'ensemble des données expérimentales concernant le spin de l'état fondamental d'^{227}Ac, de sa désintégration β vers ^{227}Th et enfin des caractéristiques de la désintégration α de ce dernier vers la bande rotationnelle fondamentale de ^{223}Ra.

- Spin de l'état fondamental de ^{227}Ac :

Le spin fondamental d'^{227}Ac a été mesuré par voie optique et a été trouvé égal à 3/2. D'autre part, différentes études de la désintégration α de ^{231}Pa vers ^{227}Ac par Abou-Leila et coll. [AB (63)] , Lange et Hagee [LA (69)] et Leang [LE (69)] ont permis d'identifier l'état fondamental d'^{227}Ac avec l'état de Nilsson 3/2 - [532] .

- Spin de l'état fondamental de ^{227}Th

D'après la valeur de log fT $\sim$ 7 trouvée pour la transition β de ^{227}Ac vers l'état fondamental de ^{227}Th, celle ci est une fois interdite avec $\Delta I = 0, \pm 1$, oui, ce qui donne 1/2, 3/2, 5/2 + comme spins possibles pour ^{227}Th.

En anticipant un peu sur ce qui va suivre et qui concerne la bande rotationnelle fondamentale, on peut dire que la solution 5/2 est à rejeter car un tel spin ne pourrait expliquer l'alternance des intensités α vers la bande fondamentale de ^{223}Ra. En effet les transitions α entre

$K_i = 5/2$ et $K_f = 1/2$ ne font pas intervenir le terme b_2, dans la probabilité de transition α, qui est responsable de l'alternance des intensités.

La solution 5/2 + est d'autre part aussi à rejeter d'après les coïncidences γ (236 keV) - γ (50,2 keV) (voir plus loin).

- Corrélations angulaires $\alpha - \gamma$

Les mesures de Petit [PE (59)] sur la corrélation $\alpha - \gamma$ (236 keV) ont donné une distribution angulaire isotrope, mais la source étant sous forme de poudre cristalline l'atténuation des corrélations, due au couplage entre le moment quadrupolaire du noyau et les champs électriques extérieurs, était importante (G_2 max évalué à 0,2).

Récemment Aguer [AG (69)] a repris ces mesures de corrélations angulaires en étudiant :

$\alpha - \gamma$ (286,2 keV)

$\alpha - \gamma$ (256,2 keV)

$\alpha - \gamma$ (236,0 keV) avec une source "métallique" avec sélection magnétique des α et mesure des γ par NaI(Tl).

Ces trois distributions ont été trouvées isotropes.

Ces deux types de mesures, en l'absence de preuves par une autre méthode, ne permettent cependant pas à elles seules de trancher entre les situations suivantes :

^{227}Th 1/2 + $\longrightarrow$ n.286,2 1/2 + $\longrightarrow$ n.50,2 3/2 -

^{227}Th 3/2 + $\longrightarrow$ n.286,2 3/2 + $\longrightarrow$ n.50,2 3/2 -

la cascade ^{227}Th 1/2 + $\longrightarrow$ n. 286,2 3/2 + $\longrightarrow$ n. 50,2 3/2 - étant exclue par les corrélations $\alpha - \gamma$ (236,2)

- Corrélations angulaires $\gamma - \gamma$

La corrélation angulaire de la cascade

γ(236,0E1) - γ(50,2-E1) a été mesurée, d'abord par Pilger [PI (57)] , mais avec un facteur d'atténuation élevé et difficile à évaluer, puis par Bragança Gil, Foucher et Petit [BR (61)] avec des sources liquides de viscosités variées et contrôlées. En extrapolant à la viscosité nulle le terme de corrélation A_2G_2,qui se réduit alors à A_2,ils ont obtenu :

$$A_2 = -0,187 \pm 0,006$$

Si l'on compare aux valeurs de A_2 tabulées pour les cascades possibles d'après les critères de sélection précédents :

	I initial (286,2)	I intermédiaire (50,2)	I final 0	A_2 ($\delta^2 = o$)
(1)	1/2 +	3/2 -	1/2 +	+ 0,250
(2)	3/2 +	3/2 -	1/2 +	- 0,200
(3)	3/2 +	3/2 -	3/2 +	- 0,200

La cascade (3) est exclue car, comme nous le verrons plus loin, la bande rotationnelle fondamentale correspond à une bande 1/2. D'autre part il faut considérer un éventuel mélange de rayonnement M2 dans les rayonnements de 50,2 et 236,0 keV.

D'après nos mesures absolues d'intensités γ et de conversion interne :

α_K (236,0 keV) = 0,047 $\pm$ 0,005 ce qui conduit à δ^2 compris entre 0 et 5.10^{-4}

et

α_{L1} (50,2 keV) = 0,175 $\pm$ 0,025 ce qui conduit à δ^2 compris entre 0 et 2.10^{-5}

Ceci est en accord avec la valeur de A_2 de Bragança Gil et coll. à laquelle correspond $\delta^2 = (3,4 \pm 2,6)(-4)$ pour expliquer l'écart avec la valeur théorique de - 0,200 pour la cascade 3/2 + $\longrightarrow$ 3/2 - $\longrightarrow$ 1/2 +.

Nous nous sommes étendus un peu longuement sur cette discussion car elle forme la base de départ de toute interprétation du schéma. Compte tenu de ces informations de corrélations angulaires et de compatibilité d'alimentation α de la bande fondamentale, il semble raisonnable d'adopter pour ^{227}Th le spin fondamental 3/2 +, identifié à l'état 3/2 + [631] , ce qui entraine :

$$^{227}\mathrm{Th}\,(3/2\,+) \xrightarrow[l=0,2]{\alpha} \text{n. } 286,2\,(3/2\,+) \xrightarrow[E1]{\gamma} \text{n. } 50,2\,(3/2\,-) \xrightarrow[E1]{\gamma} \text{n. } 0\,(1/2\,+)$$

C - 2 - <u>Vies moyennes et probabilités de transition</u>

Au paragraphe B - 6 de ce chapitre nous avons donné un certain nombre de vies moyennes obtenues par la méthode de la déformation de la bande Doppler ainsi que par l'observation des rayonnements gamma émis en vol. Par ailleurs, la connaissance du schéma de niveaux donne accès aux rapports $\frac{\text{intensité gamma}}{\text{désexcitation globale}}$ des niveaux, ce qui permet de calculer les probabilités de transition pour toutes les transitions partant d'un niveau dont la période est connue au moyen d'un de ses rayonnements gamma. Les erreurs cumulatives (vie moyenne, intensité γ, coefficients de conversion, bilans) font que les valeurs obtenues sont assez approximatives ($\pm$ 30 %, ou plus pour les rayonnements de faible intensité), mais nombreuses, et qu'il est possible de comparer ainsi des probabilités de transition dans un même noyau.

Les informations concernant une cinquantaine de probabilités de transitions ont été rassemblées dans les figures III - 27, 28 et 29 pour les rayonnements E1, M1 et E2 respectivement, l'abcisse étant l'énergie et l'ordonnée étant

le facteur de retardement en unités Moskowsky ([SI (66)], p. 880), c'est-à-dire :

$$F_M = \frac{T\ 1/2\ \text{exp.}}{T\ 1/2\ \text{s.p. (Mosk.)}}$$

Pour garder à la figure la clarté voulue, les erreurs mentionnées ci-dessus, ne sont pas données mais correspondraient, à l'échelle de la figure, à $\pm$ 3 à 4 mm.

Nous avons joint un certain nombre de transitions issues de niveaux pour lesquels seule une limite supérieure de vie moyenne est connue : elles figurent sous forme d'une flèche dirigée vers le bas. Quelques transitions M1 + E2 ont une flèche dirigée vers le haut : c'est lorsque une des composantes M1 ou E2 est donnée par une limite supérieure et que le rayonnement est donc moins probable que la limite indiquée.

Certaines tendances se dégagent de ces figures :

- Rayonnements E1

L'ensemble des points figuratifs montre que, d'une façon générale dans ^{223}Ra, de nombreux rayonnements E1 ont des facteurs d'empêchement plus faibles que ne l'indiquent les systématiques de probabilités de transitions E1, [LÖ (66)], [PI (66)] .
En anticipant un peu sur ce qui va suivre, on peut dire que ceci est dû aux interactions particule-vibrations octupolaires du coeur que l'on peut attendre très importantes dans cette région où les niveaux de vibrations octupolaires sont situés particulièrement bas en énergie dans les noyaux pair-pairs voisins (radium 222, 224, 226). Cet effet peut-être plus ou moins important suivant qu'il s'agit de transitions E1 avec $\Delta K = 0$ ou $|\Delta K| = 1$, encore faut-il tenir compte des mélanges d'états de particule par couplage de Coriolis dans chaque cas spécifique.

Il est à remarquer que toutes les transitions de faible énergie sont relativement favorisées ($5.10^2 < F_M < 10^4$). Il convient de dire que cette figure ne contient pas toutes les transitions E1 possibles : comme le montre le schéma (fig. III - 25), un certain nombre de cases sont vides là où, d'après les spins et parités, une transition serait possible. Il s'agit presque toujours de difficultés expérimentales : en général, transitions de faible intensité dont les points figuratifs seraient placés au-dessus de ceux des transitions connues, moins retardées. Mais il faut noter que pratiquement toutes les transitions E1 possibles de basse énergie ont été observées et portées sur la figure III - 27. La tendance des transitions E1 de faible énergie à être plus favorisées est donc réelle et apparaît comme un fait expérimental certain. Dans ce groupe "favorisé" on trouve en particulier les transitions inter-bandes reliant la bande 3/2 - (basée sur le niveau de 79,8 keV) et la bande fondamentale qui peuvent être fortement influencées par les vibrations octupolaires du coeur (§ C - 5).

- Rayonnements M1

Le diagramme de la figure III - 28 est beaucoup moins structuré : en particulier les transitions de 286,2 - 256,3 - 225 keV reliant le niveau 286,2 aux niveaux 1/2+, 3/2+ et 5/2+ de la bande fondamentale ont des facteurs d'interdiction très différents ($10^4 < F_M < 3.10^6$). Il en est de même pour les transitions de 234,5, 304,5, 273,0 keV alimentant les mêmes niveaux.

- Rayonnements E2

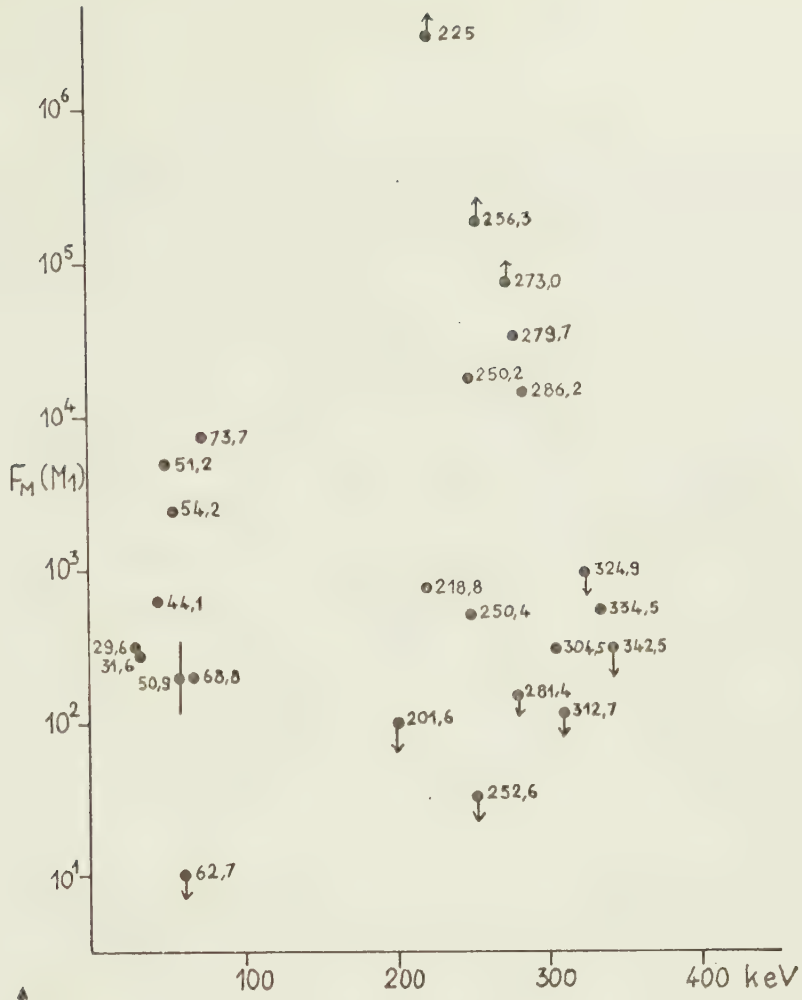
Pour ce type de rayonnements, deux principaux groupes apparaissent : un groupe qui présente une accélération d'un facteur 40 à 110 par rapport à la probabilité de transition Moskowsky et qui permet de classer un certain nombre de transitions comme

étant de type rotationnel; un autre groupe, dont les facteurs d'interdiction sont de l'ordre de 0,1 à 2 et qui correspond aux transitions inter-bandes influençées d'une façon plus ou moins importante suivant les couplages qui interviennent.

On peut par exemple remarquer le facteur 100 entre les empêchements des transitions de 286,2 et 256,3 keV qui proviennent toutes deux du niveau de 286,2 keV, 3/2 3/2 (631) et alimentent respectivement les niveaux 1/2 et 3/2 de la bande fondamentale basée sur l'état intrisèque 1/2 (640). La deuxième transition contient une partie de type collectif par suite du couplage de Coriolis entre ces deux états intrinsèques, tandis que la première est de type purement individuel.

L'ensemble de ces indications de période nous a beaucoup servi de guide qualificatif, en particulier dans les essais de groupement de niveaux en bandes rotationnelles.

Fig. III-28



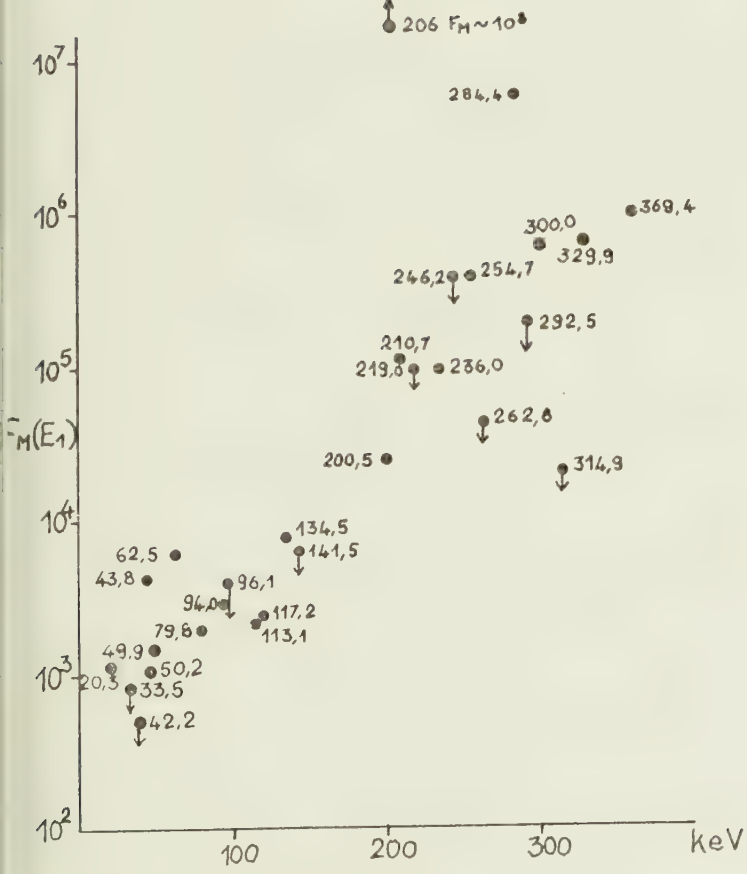


Fig. III-27

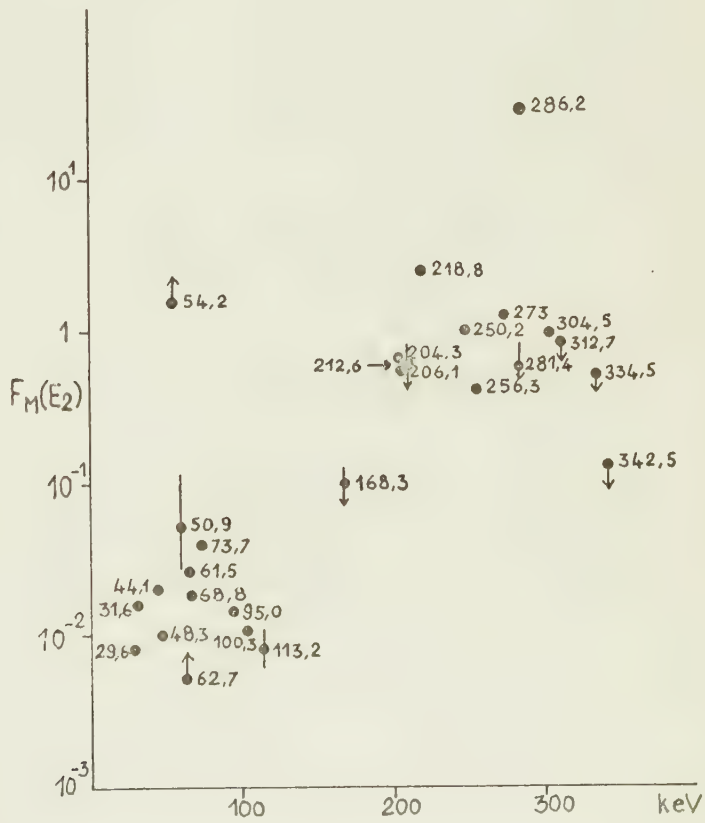


Fig. III-29

C - 3 - Cas de transitions anormales du point de vue de la conversion : effets de pénétration des électrons dans le volume nucléaire

Pour quelques transitions, à caractère prédominant M1, il a été impossible d'obtenir un accord avec les coefficients de conversion de Sliv et Band [SL (61)], dans la limite des barres d'erreur : mis à part le rayonnement de 304,5 keV , il s'agit de rayonnements qui présentent des facteurs d'empêchement M1 plus élevés que les autres (figure III - 28 = F(M1) $\sim$ quelques 10^5) nous discuterons ici en détail le cas des rayonnements de 279,7, 286,2 et 304,5 keV qui possèdent des lignes γ et d'électrons suffisamment intenses pour être mesurées avec précision.

Le caractère anormal d'une transition M1, par rapport aux coefficients de Sliv et Band, provient de ce que ces calculs, qui incluent l'effet de dimension finie de la charge nucléaire, ne tiennent pas compte des effets dynamiques de pénétration des électrons dans les courants nucléaires. Ces effets peuvent devenir importants dans certains cas, lorsque l'élément de matrice principal de la conversion, qui est identique à celui de l'émission γ de même caractère multipolaire, est empêché.

Church et Weneser [CH (56), CH (60)] définissent le paramètre:

$$\lambda = \frac{\mathcal{M}_e}{\mathcal{M}_\gamma} = \frac{\int_0^\infty d\hat{r}_N \, j_N \, A^*_{1M}(kr_N)\left(\frac{r_N}{R}\right)^2}{\int_0^\infty d\hat{r}_N \, j_N \, A^*_{1M}(kr_N)}$$

où $\mathcal{M}_e$ est l'élément de matrice de pénétration

$\mathcal{M}_\gamma$ est l'élément de matrice de l'émission γ
j_N le courant nucléaire,

et écrivent, en première approximation, le coefficient de conversion total dans la couche K :

$$\alpha^{K}_{M1}(\lambda) = \alpha^{K\to L-1/2}_{M1}(\text{Sliv})\left|1 - c_{L-1/2}(R)(\lambda-1)\right|^2 + \alpha^{K\to L+1/2}_{M1}(\text{Sliv})$$

où L - 1/2 et L + 1/2 décrivent les deux états finaux possibles, le premier correspondant à une plus grande densité d'électrons près du noyau. Le deuxième terme étant inférieur à 10 % du premier, on peut écrire, si l'on se contente de calculer λ à quelques % près :

$$\alpha^{K}_{M1}(\lambda) = \alpha^{K}_{M1}(\text{Sliv})\left|1-(\lambda-1)c_K\right|^2$$

On peut écrire des expressions analogues pour les autres couches : les coefficients C_K sont tabulés par Church et Weneser pour quelques valeurs de Z et de l'énergie du rayonnement ; on sait d'autre part (Herrlander et Graham [HE (64)]) que pour Z = 81 et pour une énergie de 280 keV:

$$C_K \;/\; C_{L_1} \;/\; C_{L_2} \;/\; C_{L_3} = 1 \;/\; 1{,}05 \;/\; 0{,}53 \;/\; 0{,}15$$

La conversion peut être ainsi augmentée ou diminuée, en tenant compte des effets de pénétrations, suivant que $\lambda >$ ou < 1.
On sait que l'élément de matrice principal M1 peut être empêché pour différentes raisons de règles de sélection : règle de sélection radiale, interdiction l, ou bien, dans le cas de transitions de type rotationnel, annulation accidentelle dûe à la compensation des facteurs gyromagnétiques de la particule célibataire et du cœur, etc ...

La connaissance des éléments de matrice de pénétration peut donc, en principe, permettre de renseigner sur des détails de structure nucléaire, en servant de test pour une proposition de structure.

a - Rayonnement de 286,2 keV

Pour ce rayonnement, les raies K, L_1 et L_2 ont pu être mesurées au $\pi\sqrt{2}$, la raie L_3 étant masquée par les descendants de ^{223}Ra. Le tableau suivant montre les valeurs du mélange $\delta^2\left(\frac{E2}{M1}\right)$ que l'on obtient à partir des coefficients de conversion expérimentaux, en utilisant les coefficients théoriques de Sliv :

	I_e^-	α exp.	α théor. (Sliv) M1	E2	$\delta^2\left(\frac{E2}{M1}\right)$
K	(7,7 ± 0,5)(-3)	0,51 ± 0,03	0,65	0,075	0,3 ± 0,05
L_1	(1,33±0,07)(-3)	0,089±0,005	0,11	0,014	0,28±0,05
L_2	(2,16±0,2)(-4)	0,0144±0,0015	0,013	0,043	0,05±0,02
L_1/L_2		6,2 ± 0,4	8,5	0,33	0,12±0,03

Les écarts des valeurs de δ^2, incompatibles avec les barres d'erreur, nous ont conduit à envisager une anomalie de la conversion M1 et à calculer le facteur λ, rapport de l'élément de matrice de pénétration à l'élément de matrice de l'émission γ. Ce calcul a été effectué en prenant $C_K = 0,028$ [CH (61)] et en déduisant : $C_{L_1} = 0,029$

$C_{L_2} = 0,015$

comme il a été indiqué plus haut.

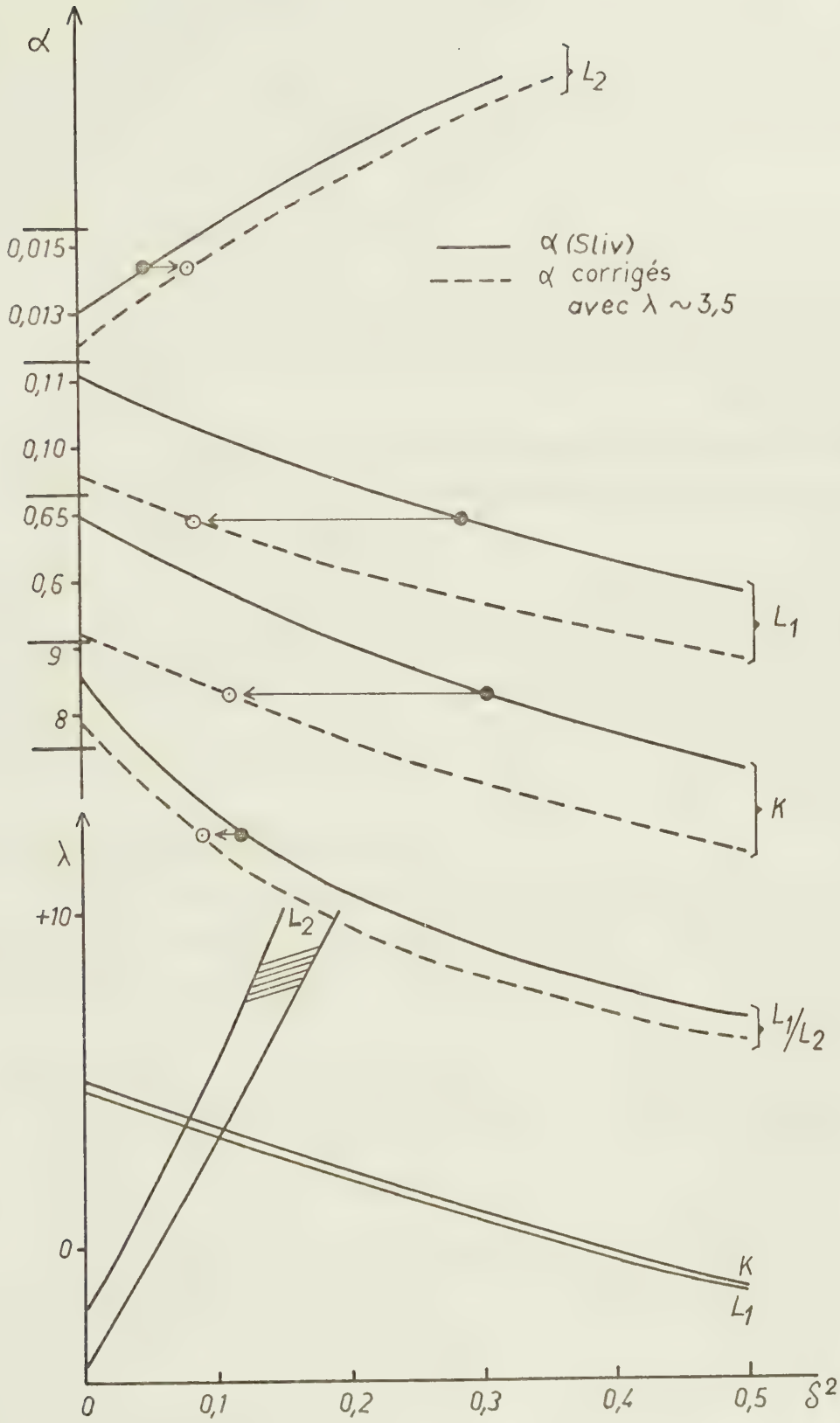

α
0,015
0,013
0,11
0,10
0,65
0,6
9
8
λ
+10
0
L2
α (Sliv)
α corrigés
avec λ ~ 3,5
L1
K
L1/L2
K
L1
0
0,1
0,2
0,3
0,4
0,5
δ²

Fig. III-30

La figure III - 30 montre la variation de λ en fonction de δ^2 : les effets dynamiques dus à la pénétration des électrons ontune influence semblable sur les couches K et L_1, et moindre sur la couche L_2. La région commune aux trois courbes conduit à adopter $\lambda \sim 3,5$, avec $\delta^2 \sim 0,10$.

Sur cette figure sont également portés :

- en traits pleins : les coefficients de conversion en fonction de δ^2, calculés à partir des coefficients de Sliv.
- en traits pointillés : les coefficients corrigés en prenant $\lambda \sim 3,5$ et en utilisant la formule approchée donnée ci-dessus.

A titre de vérification, les points expérimentaux ont été portés sur ces courbes, afin de montrer l'importance relative de la diminution de la conversion dans les différentes sous-couches.

b - Rayonnement de 279,7 keV

Nous ne disposons, pour ce rayonnement, que des intensités absolues de conversion dans les couches K et L_1 ainsi que de $I_\gamma = (6 \pm 1)(-4)$.

	I_{e^-}	α exp	α théor. (Sliv) M1	E2
K	$(6,9 \pm 1)(-4)$	$1,15 \pm 0,2$	0,70	0,084
L_1	$(1,3 \pm 0,2)(-4)$	$0,21 \pm 0,05$	0,12	0,014

Ce rayonnement présente donc une conversion anormalement forte. On peut effectuer une analyse identique à celle décrite pour le rayonnement de 286,2 keV, en se guidant sur le fait que $I_{e^-}(L_3) \leqslant 3(-5)$ permet de fixer une limite supérieure égale à 0,2 pour δ^2.

Un bon accord est obtenu avec les valeurs expérimentales des coefficients de conversion, en calculant des coefficients corrigés pour $0 < \delta^2 < 0,2$ avec $-14 < \lambda \leqslant -10$
ou $83 < \lambda \leqslant 87$

on trouve respectivement : α_K(corrigé) = 1,19

α_{L_1}(corrigé)= 0,20

En l'absence de corrélations angulaires $\gamma - e^-$, qui font intervenir directement le facteur $(1 - (\lambda - 1)\ C_i)$ on ne peut décider avec certitude entre les deux domaines de valeurs de λ , les premières valeurs données $(-14 < \lambda \leqslant -10)$ restant, cependant plus probables.

c - Rayonnement de 304,5 keV

Ce rayonnement, qui n'appartient pourtant pas à la catégorie des rayonnements M1 relativement empêchés (voir fig. III - 28) présente cependant une conversion très anormale dans les couches K, L_1, L_2 :

	I_{e^-}	α exp	α théor. (Sliv) M1	E2
K	(9 ± 0,5)(-3)	0,9 ± 0,05	0,57	0,068
L_1	(1,7 ± 0,1)(-3)	0,17 ± 0,01	0,096	0,012
L_2	(2,2 ± 0,3)(-4)	0,022 ± 0,003	0,011	0,034
L_3	(2,5 ± 0,5)(-4)	0,0025 ± 0,0005	0,0006	0,015

En appliquant à ce cas une analyse semblable à celle effectuée pour le rayonnement de 286,2 keV, on n'arrive pas à expliquer ce désaccord uniquement par une anomalie de la conversion M1.

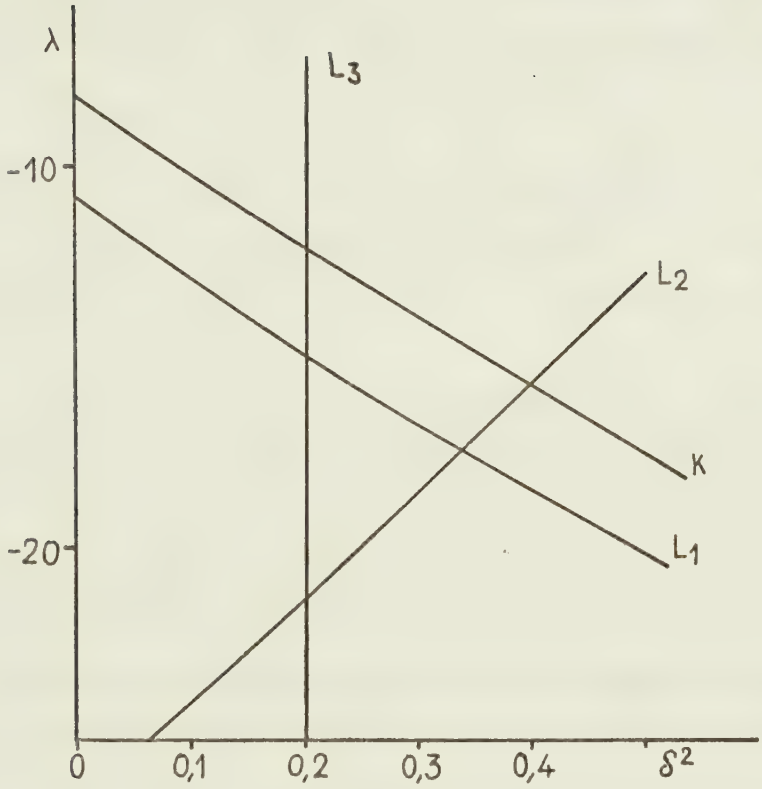


Fig. III - 31

Comme le montre la figure III - 31 , qui représente le paramètre λ en fonction de $\delta^2\left(\frac{E2}{M1}\right)$, la valeur de λ commune aux trois courbes, représentant les conversions dans les couches K, L_1 et L_2, correspondrait à une valeur de δ^2 qui est exclue par celle fixée d'après la conversion dans la couche L_3 qui n'est pratiquement pas affectée par les effets de pénétration.

Mais, il faut noter que la transition de 304,5 keV a lieu entre deux niveaux de même spin :

n. 334,5 (3/2 +) $\xrightarrow{(304,5)}$ n. 29,9 (3/2 +) (fig. III-25)

et il peut exister une composante de transition E0 entre ces deux niveaux.

Comme on le sait, les transitions E0 existent uniquement par un processus d'interaction directe des électrons avec les distributions de charges à l'intérieur du volume nucléaire. En première approximation, la probabilité de transition absolue W(E0), pour la conversion E0, peut s'écrire :

$$W(E0) = \Omega . \rho^2$$

où Ω est un facteur électronique

et ρ un paramètre qui ne dépend que de la structure nucléaire :

$$\rho = \sum_p \int \phi_f^* \left[\left(\frac{r_p}{R}\right)^2 - \sigma \left(\frac{r_p}{R}\right)^4 + \cdots \right] \phi_i \, d\tau$$

où ϕ_i et ϕ_f décrivent les états initiaux et finaux, r_p la position du $p^{ième}$ proton et R le rayon nucléaire.

Church et Weneser [CH (55)], [CH (56)a], [CH (58)] ont calculé les probabilités réduites de conversion E0 :

$$\Omega(Z,k) = \left(\frac{W}{\rho^2}\right)$$

pour différentes couches, dans l'approximation d'une sphère uniformément chargée de rayon R.

Nous nous sommes basés sur ces calculs pour interpréter l'anomalie de conversion du rayonnement de 304,5 keV en adoptant, pour la conversion E0, les rapports suivants [CH (56)a] :

$$K \,/\, L_1 \,/\, L_2 = 0{,}78 \,/\, 0{,}144 \,/\, 0{,}048$$

la conversion dans la couche L_3 étant négligeable.
Après calculs, un compromis acceptable est obtenu avec :

$$\delta^2\left(\frac{E2}{M1}\right) = 0{,}20 \quad \text{et} \quad 25\ \% \text{ de transition E0}$$

qui conduit aux intensités d'électrons suivantes :

$K = 9(-3)$, $L_1 = 1,6(-3)$, $L_2 = 1,9(-4)$, $L_3 = 3(-5)$

On en déduit, connaissant la période du niveau de 334,5 keV, (280 ± 40)ps, et les bilans de désexcitation de ce niveau :

$$W_K(E0) = 1,4 \times 10^8 \text{ sec}^{-1}$$

D'après les calculs de Church et Weneser :

$$\Omega_K \ (Z = 88,\ k = 0,6) \sim 10^{12}$$

d'où $\rho \sim 1/100$

Evidemment, il se peut qu'on ait affaire pour ce rayonnement, à la fois à une composante E0 et une anomalie de la conversion M1, auquel cas les valeurs du pourcentage de transition E0 et de ρ données ci-dessus seraient des limites supérieures.

Là encore des corrélations angulaires $\alpha - e^-$ ou $\gamma - e^-$ seraient nécessaires car elles font intervenir directement $\frac{W(E0)}{W\gamma(E2)}$, $\delta^2 \left(\frac{E2}{M1}\right)$ et le terme d'interférence E0 - E2 qui dépend uniquement des fonctions d'ondes électroniques et peut être calculé en fonction de Z et de l'énergie.

On a seulement pu noter que les rayonnements de 304,5 et 334,5 keV , issus du même niveau, présentent une forte corrélation angulaire $\alpha - \gamma$, dans les expériences multidimensionnelles. Sans pouvoir en tirer de conclusion quantitative précise, on peut seulement dire qu'une telle corrélation serait compatible avec la valeur de δ^2 donnée ci-dessus.

Malheureusement on manque de données expérimentales systématiques sur les transitions E0, pour pouvoir comparer la valeur du paramètre ρ obtenue ici.A titre indicatif on peut seulement mentionner quelques tests de valeurs de ρ pour des

noyaux pair-pairs de la région des platines : dans le cadre du modèle dit de "vibration libre" (Scharff-Goldhaber et Weneser [SC (55)] , et dans le modèle à"forme instable" de Wilets et Jean [WI (56)] les valeurs prévues pour ρ sont respectivement $\sim$ 1/150 et 1/300 pour les transitions entre deuxième et premier états 2 +, tandis que dans le cadre du modèle en couches on peut s'attendre à des valeurs voisines de l'unité.

C-4 Bande rotationnelle fondamentale

L'existence d'un bande rotationnelle fondamentale a été postulée d'abord par Pilger [PI (57)] . Peu de transitions étant connues à cette époque, les bases étaient fragiles et certains niveaux diffèrent de ceux que nous utilisons ici. Le grand nombre de transitions disponibles aujourd'hui montre que la partie basse énergie du schéma contient des niveaux de spin 1/2 +, 3/2 +, 5/2 +, 7/2 + et 9/2 + que l'on peut tenter de grouper en bande rotationnelle.

Les arguments sont les suivants :

- Energies :

Nous avons ajusté les paramètres d'une équation d'énergie contenant, en plus des termes en I(I + 1) habituels, un terme de rotation-vibration dont l'importance dépend de la déformabilité du noyau et de la relation existant entre le moment d'inertie et la déformation, et un terme de couplage de Coriolis avec d'autres bandes :

$$E_I = E_o + A\left[I(I+1) + a(-)^{I+1/2}(I+1/2)\right] + B\left[I(I+1) + a(-)^{I+1/2}(I+1/2)\right]^2 + C(-)^{I+1/2}\, I(I+1/2)(I+1).$$

Ceci donne les énergies suivantes :

Spin I	1/2	3/2	5/2	7/2	9/2	11/2	13/2
E_I keV	0	29,9	61,5	130,3	174,7	280,0	315,8

avec la valeur des paramètres :

$\hbar^2/2\mathcal{J}$ = 8,6 keV a = + 0,18 B = - 28 eV C = + 53 eV

Nous reviendrons plus loin sur la signification de telles valeurs de ces paramètres. Il faut cependant noter qu'une formule d'énergie contenant moins de paramètres ne donne qu'un accord très pauvre ; en effet dans cette région de déformation moyenne, si l'hypothèse adiabatique n'est pas pleinement justifiée, on peut penser que les interactions du type rotation-vibration, ou du type couplage du mouvement intrinsèque avec le mouvement de rotation du noyau peuvent devenir suffisamment importants pour les spins élevés, pour entraîner une modification de la forme du noyau, d'où une variation du moment d'inertie.

La bande ainsi construite explique les propriétés du niveau de 315,8 keV qui ne possède aucune désexcitation vers des niveaux de spin bas ou moyen et dont on peut penser qu'il doit avoir un spin élevé. Les seules transitions attribuables à ce niveau sont celles, très faibles, de 141 keV (visible en γ-γ seulement) vers le niveau de 174,7 keV, et celle, possible, de $\sim$ 36 keV. Le niveau de 280 keV ainsi défini est en contradiction avec la valeur 5/2 + (3/2+) du spin déterminé d'une façon certaine pour le niveau de 280,3 keV. Il faut donc admettre que le niveau 280,0 11/2 + est différent de et masqué par le niveau 280,3 keV 5/2 + (3/2 +), bien alimenté par émission α. C'est dans cette optique que l'on admet que le niveau de 280,0 keV 11/2 + est alimenté faiblement, d'une part par le niveau de

315,8 keV, et d'autre part d'une façon négligeable (quelques 10^{-4}) par l'émission α, car les bilans d'alimentation et de désexcitation du niveau 280,3 keV sont égaux à 5.10^{-4} près.

La faible transition de 105 keV vers le niveau 174,7 9/2 + peut provenir aussi bien du niveau 280,3 (5/2 +) que de celui introduit à 280,0 (11/2 +) (rayonnements respectivement (M1 + E2) et E2), mais ceci n'a pu être précisé faute de lignes de conversion perceptibles.

- Transitions intra-bande

On dispose d'un ensemble assez abondant de transitions confirmant l'existence de cette bande :
rayonnements E2 accélérés pour les transitions : 5/2+ → 1/2+, 5/2+ → 3/2+, 7/2+ → 3/2+, 7/2+ → 5/2+, 9/2+ → 5/2+ (voir fig. III-29)
transitions M1 + E2 avec des valeurs de $\delta^2 = \frac{\gamma(E2)}{\gamma(M1)}$ acceptables :

3/2+ → 1/2+ (δ^2 =0,11), 5/2+ → 3/2+ (δ^2 = 0,08), 7/2+ → 5/2+ (δ^2 = 0,18)

- Transitions interbandes

Celles qui confirment l'existence de la bande 1/2 + sont les transitions de la bande 3/2 - (voir plus loin) vers la bande 1/2 +. Elles forment un groupe de transitions E1 ayant des facteurs d'empêchement F_M assez voisins (fig. III-27) et concernent les passages :

3/2- → 1/2+, 3/2- → 3/2+, 5/2- → 3/2+, 5/2- → 5/2+, 7/2- → 5/2+, 7/2- → 7/2+ (Fig. III - 32)

Une autre transition très importante pour l'interprétation est celle qui relie le niveau favorisé au niveau fondamental 1/2 + : 286,2 keV (3/2+ fav. → 1/2+ fond) qui est ralentie dans sa composante E2 (F_M (E2) $\sim$ 50).

- Alimentations α.

La formule simplifiée de Bohr et Mottelson concernant l'émission α, [MA (62), (64)] , est souvent utilisée comme test de compatibilité approximative d'alimentation des niveaux d'une même bande de rotation : si l'on néglige l'interaction α-noyau pendant la traversée de la barrière de potentiel, ce qui serait exact pour un moment d'inertie infiniment grand du noyau, le facteur d'empêchement de la transition α s'exprime :

$$1/F = \sum_L C_L \left| \langle I_i, L, K_i, K_f-K_i \mid I_i, L, I_f, K_f \rangle + (-)^{I_f+K_f} b_L \langle I_i, L, K_i, -(K_i+K_f) \mid I_i, L, I_f, -K_f \rangle \right|^2$$

avec $F = \dfrac{P(\varepsilon_{I_f})}{\lambda^{I_i\ K_i}_{I_f\ K_f}}$ où $P(\varepsilon_{I_f})$ est la probabilité de pénétration de la particule α à travers la barrière de potentiel nucléaire (ε_{I_f} : énergie de la désintégration α dans le système du centre de masse) et $\lambda^{I_i\ K_i}_{I_f\ K_f}$ est la probabilité de la transition α entre les deux états $\mid I_i, K_i \rangle$ et $\mid I_f, K_f \rangle$.

$C_L = G^2_{L,\ K_i-K_f}$

$b_L = G_{L,\ K_i+K_f} / G_{L,\ K_i-K_f}$ avec $b_L = 0$ si $L \leqslant K_i+K_f$

$G_{L,\ K_i+K_f}$ et $G_{L,\ K_i-K_f}$ étant les largeurs réduites qui représentent la probabilité de formation de la particule α respectivement dans les états K_i+K_f et K_i-K_f.

Poggenburg [PO (65)] a effectué des calculs de probabilité d'émission α basés sur la théorie de Mang. Des résultats numériques couvrent la région A = 229 à A = 252 et ne sont donc pas applicables ici. Mais on peut néanmoins utiliser certaines règles semi-empiriques qui découlent de ce travail, qui ne traite que le cas de configurations pures dans des noyaux bien déformés. Il convient donc d'être très prudent en appliquant ces résultats à un noyau de transition.

En introduisant une barre d'erreur importante sur l'alimentation du niveau de 280,0 keV, non observé directement, on obtient, par une méthode des moindres carrés :

$C_2 = 3,8\ (-3)$ $\qquad$ $b_2 = -\ 2,0 \pm 0,03$

$C_4 = 3,4\ (-3)$ $\qquad$ $b_4 = -\ 0,6 \pm 0,1$

$C_6 \sim 8\ (-5)$ $\qquad$ $b_6 \sim -2,9$

On peut remarquer que C_2 est peu différent de C_4, donc que les transitions α avec $L = 2$ sont ralenties. Ceci est en accord avec le ralentissement de la transition E2 de 286,2 keV reliant l'état correspondant à la transition α favorisée, (voir § C-6), à l'état fondamental. En effet, dans les deux cas :

$$^{227}\mathrm{Th}\ \ 3/2 + (631) \xrightarrow[L=0,2]{\alpha} {}^{223}\mathrm{Ra}\ \ 1/2 +$$

et $$^{223}\mathrm{Ra}\ \ 3/2 + (631) \xrightarrow[M1+E2]{\gamma} {}^{223}\mathrm{Ra}\ \ 1/2 +$$

les empêchements α (L=2) et γ (λ=2) sont liés car les transitions font intervenir le même changement de configurations pour le neutron célibataire.

- Identification de l'état intrinsèque correspondant à l'état fondamental :

aucune mesure du moment quadrupolaire de ^{223}Ra n'a pu être effectuée, mais on peut, à partir des données de Myers et Swiatecki [MY (65)], obtenir une valeur approchée de la déformation de ^{223}Ra dans son état fondamental. En effet, pour $Z = 88$ et $N = 135$: $Q_0 = 6,57$ barns, ce qui est en bon accord avec la valeur que l'on peut déduire de noyaux pair-pairs voisins, et permet de calculer, [NI (55)] : $\delta \sim 0,17$ $(\eta \sim 3)$.

Or, dans cette région, l'état de Nilsson pouvant correspondre au 135ème neutron est l'état 1/2 + (640).
Le paramètre de découplage de la bande de rotation construite sur cet état a été calculé pour $\mu = 0,45$ et $\mu = 0,70$

pour différentes valeurs de la déformation (Valentin [VA (62)]) :

η	+ 2	+ 4	+ 6
μ = 0,45	- 5,49	- 2,29	- 0,22
μ = 0,70	4,85	4,34	3,38

La valeur 0,18 trouvée pour a expérimentalement correspondrait donc à $\mu \sim 0,55$ ($\eta = 3$), mais une telle interpolation est très hasardeuse, étant donné que a est très sensible à une petite variation de μ.

Cependant on peut aussi penser que l'état 1/2 (640) peut interagir avec l'état 1/2 [651], proche dans le diagramme de Nilsson. A ce dernier état correspond un paramètre de découplage négatif que nous donnons ici à titre indicatif pour la région de déformation qui nous intéresse:

η	+ 2	+ 4	+ 6
μ = 0,45	4,49	1,27	- 0,67
μ = 0,70	- 5,91	- 5,59	- 4,64

mais il n'est pas sûr que ce couplage soit suffisamment important (les deux états 1/2(640) et 1/2(651) sont issus de couches différentes) pour pouvoir expliquer la faible valeur du paramètre de découplage de la bande fondamentale et le signe positif du paramètre C.

Par ailleurs, afin de situer le radium 223 par rapport aux noyaux voisins, nous avons porté sur la figure III-31bis les valeurs du moment d'inertie de la bande fondamentale de différents isotopes de masses paires et impaires de

radium et de thorium, ainsi que la valeur du rapport $\hbar^2/2\mathcal{J}$ trouvée dans la présente étude.

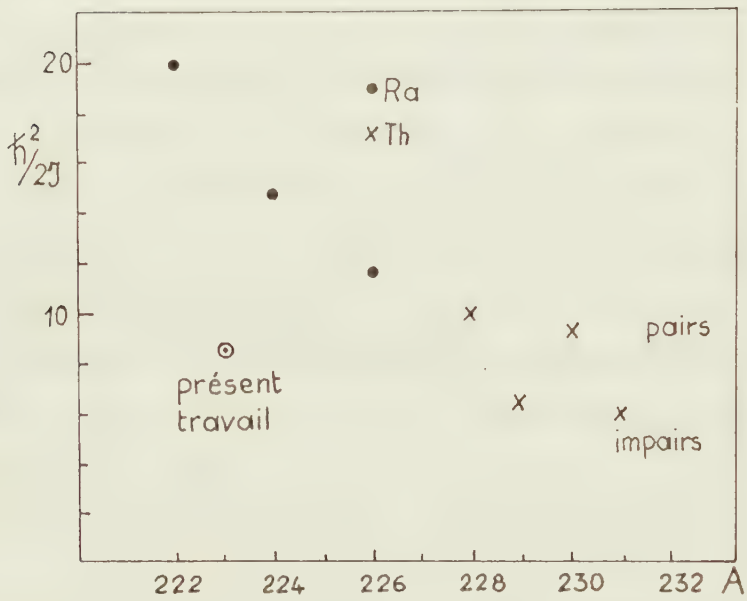


Fig. III-31^{Bis}

C-5 Bande 3/2 - (761)

La partie des basses énergies du schéma présente une série de niveaux de parité négative avec les spins successifs : 3/2 - , 3/2 - , 5/2 - , 7/2 - , 9/2 - (7/2 -).
Le niveau le plus bas en énergie (50,2 keV : 3/2 -) présente un facteur d'empêchement α très élevé ($F = 8.10^5$) et l'examen des facteurs d'empêchement des autres niveaux montre qu'il n'est pas possible de considérer ce niveau comme la tête d'une bande rotationnelle, car les membres de cette bande auraient alors des facteurs d'empêchement bien plus élevés que ce qui est

observé et aucune compensation accidentelle ne pourrait modifier ce résultat.

- Energies

Les niveaux de parité négative ont été traités au moyen d'une formule d'énergie à trois paramètres ajustés :

$\hbar^2/2\mathcal{J}$ = 9,16 keV B = - 52,4 eV C = - 52,6 eV

Ce sont les niveaux :

Spin	3/2-	5/2-	7/2-	9/2-	11/2-	13/2-
E keV	79,8	123,9	174,7	247,5	296,7	386,3

Les niveaux déduits (spins 11/2 et 13/2) ne sont pas détectés expérimentalement, on peut donc penser que l'alimentation α devient très faible pour $L \geqslant 5$, c'est-à-dire pour $I \geqslant 11/2$.

D'autre part, la valeur assez élevée et négative du paramètre C peut, peut-être s'expliquer par un couplage avec la bande basée sur le niveau intrinsèque 1/2 - [770] qui possède un facteur de découplage négatif assez élevé et qu'il est impossible de détecter étant donnée l'interversion de l'ordre des niveaux.

- Transitions intra-bande

Elles sont moins bien connues que celles de la bande fondamentale car les énergies de plusieurs d'entre elles sont telles que les raies de conversion sont placées d'une façon défavorable pour l'observation, dans le spectre des électrons de conversion. On distingue cependant :

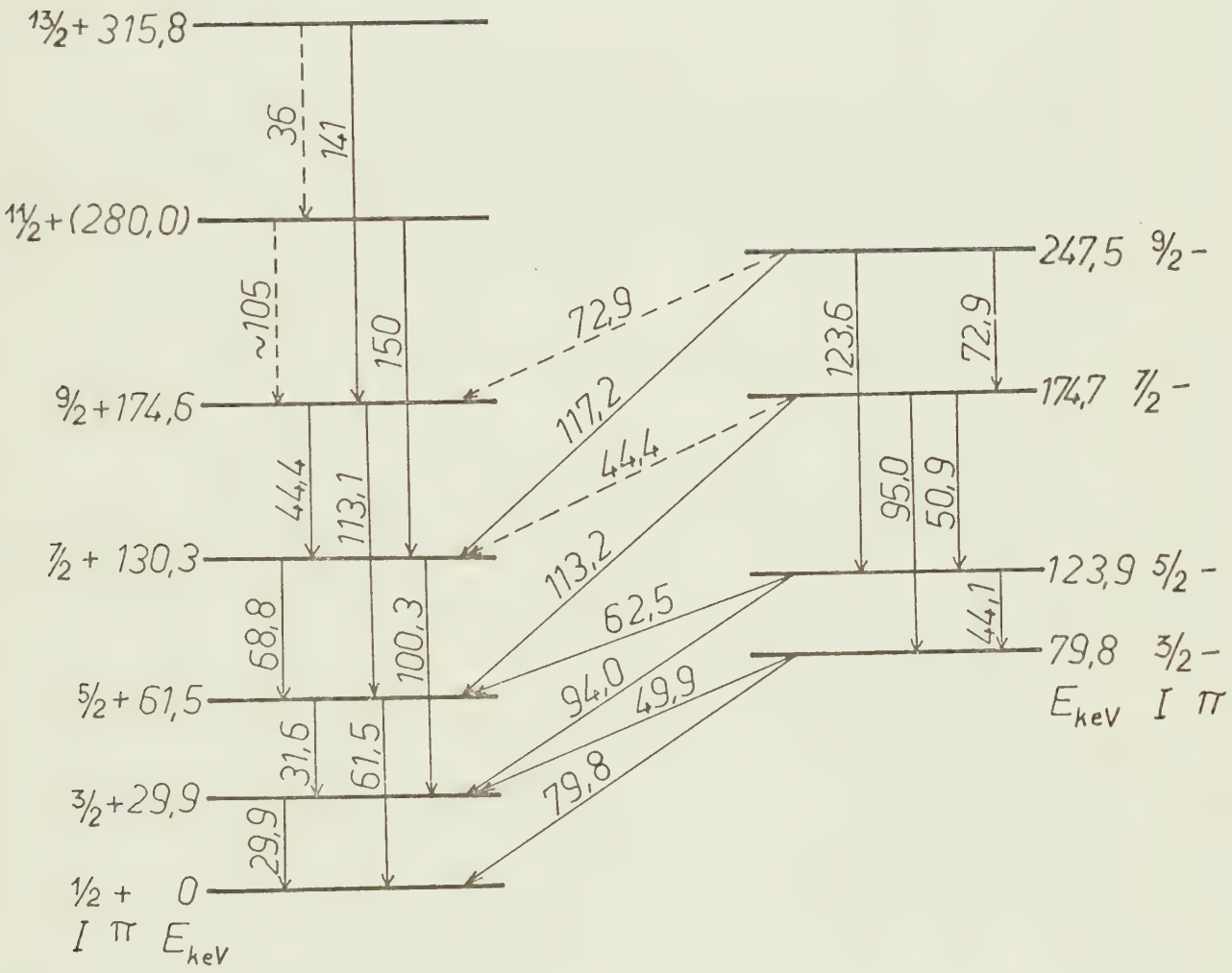

13/2+ 315,8
11/2+(280,0)
9/2+174,6
7/2+ 130,3
5/2+ 61,5
3/2+29,9
1/2+ 0
I π E keV
36
141
~105
150
44,4
113,1
68,8
100,3
31,6
61,5
29,9
72,9
117,2
44,4
113,2
62,5
94,0
49,9
79,8
247,5 9/2-
174,7 7/2-
123,9 5/2-
79,8 3/2-
E keV I π
123,6
72,9
95,0
50,9
44,1

Fig. III-32

5/2- ⟶ 3/2- : 44,1 keV, $\delta^2 = 0,25$
7/2- ⟶ 5/2- : 50,9 keV, $\delta^2 \leqslant 0,11$
7/2- ⟶ 3/2- : 95,0 keV, E2
9/2- ⟶ 7/2- : 72,9 keV, δ^2 inconnu (rayonnement γ obscurci par les X_{K_α} des descendants (Pb), et lignes de conversion complexes).
9/2- ⟶ 5/2- : 123,6 keV, E2 (très faible)

- Alimentations α

Le système d'équations est apparemment sous-déterminé (4 valeurs d'intensités α pour 5 inconnues). Si cependant on admet que $C_5 \ll C_3$, comme il a été indiqué à propos des énergies (non observation de niveau pour $I > 9/2$), une seule solution est alors possible :

$C_1 = 2,67\ (-3)$, $C_3 = 1,25\ (-2)$, $b_3 = -\ 0,8$, $C_5 \leqslant 5\ (-4)$

Les valeurs relatives de C_1 et C_3 indiquent que l'onde $\alpha(L = 1)$ est relativement empêchée. Par ailleurs, la transition de 206,4 keV qui relie l'état favorisé de 286,2 keV à l'état 3/2, 3/2 (761) est très empêchée aussi ($F_M \sim 10^8$). On retrouve donc ici la règle citée plus haut concernant la similitude qui existe entre les ondes d'alimentation L d'un niveau et le rayonnement EL électrique qui relie les mêmes états. Ceci justifie en quelque sorte le choix de C_5 petit, et est conforme à la règle empirique de Poggenburg : la première onde L importante devrait être $L \geqslant |\Delta n_z| + |\Delta\Lambda|$, c'est-à-dire $L \geqslant 3$.

- Transitions inter-bandes

Nous avons plus particulièrement étudié les transitions E1, déjà mentionnées ci-dessus (fig. III-32)

qui relient les niveaux de cette bande $\frac{3}{2}$ - à ceux de la bande fondamentale.

TABLEAU III - e

Facteurs d'empêchement Nilson F_N et Moskowsky F_M des transitions E1 entre bande $\frac{3}{2}$ - et bande fondamentale $\frac{1}{2}$ + pour $\eta = 3$ ($\mu = 0,45$, $\chi = 0,05$)

E_{keV}	Etat initial	Etat final	$\frac{3}{2}(761)$	$\frac{3}{2}(761)$	$\frac{3}{2}(761)$	$\frac{1}{2}(501)$	$\frac{1}{2}(501)$ ← config. initiale	
			$\frac{1}{2}(640)$	$\frac{1}{2}(651)$	$\frac{3}{2}(631)$	$\frac{1}{2}(640)$	$\frac{1}{2}(640)$ ← config. initiale	
79,8	3/2 -	1/2 +	4 (-2)	1,25(-1)	----	8 (-4)	8 (-5)	2000
49,9	3/2 -	3/2 +	2,5(-3)	8	1,4(-4)	1,6(-3)	6 (-3)	1500
94,0	5/2 -	3/2 +	8 (-3)	2 (-1)	5 (-4)	1 (-3)	1 (-3)	2800
62,5	5/2 -	5/2 +	2,2(-3)	4,5(-1)	8 (-4)	7 (-3)	7 (-3)	6200
113,2	7/2 -	5/2 +	1 (-2)	1,4(-1)	3 (-4)	2,2(-3)	7 (-4)	2200
44,4	7/2 -	7/2 +	>1 (-2)	>3 (-2)	>8 (-5)	>7 (-4)	>3 (-3)	2200
117,2	9/2 -	7/2 +	1,4(-3)	1 (-1)	2,5(-4)	7 (-4)	5 (-3)	2500
			F_N					F_M

Le tableau III - e donne les facteurs d'empêchement Moskowsky F_M pour ces transitions et les facteurs d'empêchement de Nilsson calculés dans l'hypothèse d'une déformation $\eta = 3$, (pour $\mu = 0,45$, $\chi = 0,05$, valeurs qui ne sont probablement pas bien adaptées pour $A = 223$).

La première colonne des facteurs d'empêchement F_N concerne les configurations initiales et finales dominantes, les autres colonnes donnant, à titre indicatif, les empêchements concernant les configurations pouvant intervenir à titre de mélange.

Comparativement entre elles, les probabilités de transition entre les niveaux des bandes basées sur les configurations principales 3/2 (761) et 1/2 (640) présentent la régularité signalée par Vergnes [VE(62)] suivant le type de transition A ou B : les transitions de type B ($I_i \rightarrow I_f = K_f+1$) sont moins retardées que les transitions de type A ($I_i \rightarrow I_f = K_f$).

On sait que les transitions E1 ne sont en général pas permises par les règles d'Alaga; il en résulte que les probabilités de transition sont très sensibles aux impuretés de la fonction d'onde, et d'autant plus que la déformation est petite.
On peut remarquer que les facteurs d'empêchementMoskowsky sont, en moyenne, de 10 à 100 fois plus faibles que ceux de la plupart des rayonnements E1 ($\Delta K = 1$) des zones de grande déformation.
D'autre part l'examen des facteurs d'empêchement de Nilsson montre un écart du même ordre avec les systématiques établies dans la région des terres rares et des actinides [VE (62), PI (66), LÜ (66)].

Un essai a été tenté en tenant compte des différentes possibilités de couplage de Coriolis, mais n'a pu rendre compte d'une façon satisfaisante de toutes les probabilités de transition.
Pratiquement il faudrait également tenir compte des effets de corrélations de paires [MO (64), VE (65), PI (66)] ainsi que des couplages possibles entre modes intrinsèques et modes collectifs [LÜ (66), MO (66), PI (66), BE (67)].
En effet dans cette région, les niveaux de vibrations octupolaires du coeur sont situés particulièrement bas en énergie, et le couplage du nucléon célibataire avec ces vibrations peut expliquer aisément l'accélération observée pour les transitions E1, car la partie collective, dans l'expression de la probabilité de transition, peut être 10^2 à 10^3 fois plus importante que la partie purement individuelle, surtout si l'on tient compte du couplage de l'état 3/2 (761) avec l'état 1/2 (770) (on a alors affaire à des transitions avec $\Delta K = 1$ et $\Delta K = 0$, ces dernières étant plus influencées par les vibrations octupolaires car les niveaux 1^-,K = 0 sont les plus bas en énergie (fig.III-35) dans les noyaux pairs voisins).

C - 6 Bande 3/2+ favorisée. 286,2(3/2+) -342,9(5/2+) - 445,1(7/2+)

La transition α dite favorisée est caractérisée par un facteur d'empêchement faible car la particule α peut se former à partir de tous les protons et tous les neutrons appariés dans le même état de Nilsson, que l'on identifie ici à l'état 3/2 + [631].

La transition α vers le niveau de 286, 2 keV possède en effet un facteur d'empêchement faible : 5,5, mais d'autres preuves sont nécessaires, qui ont été données plus haut, à propos de la relation existant entre les transitions électriques reliant le niveau de 286,2 keV aux niveaux intrinsèques inférieurs et les caractéristiques de l'alimentation α vers ces mêmes niveaux (rayonnement $E(\lambda)$ et transition $\alpha(L = \lambda)$).

D'autre part une caractéristique importante, et qui est satisfaite ici, est que la composante L=0 de l'émission α, soit prédominante : Nous avons vu en effet que l'isotropie de la corrélation angulaire :

$$^{227}\mathrm{Th}\ 3/2+ \xrightarrow[L=0,2]{\alpha} {}^{223}\mathrm{Ra}\ \text{n. } 286,2\ \text{keV} \begin{array}{l} \longrightarrow \text{n. } 0 \\ \longrightarrow \text{n. } 29,9\ \text{keV} \\ \longrightarrow \text{n. } 50,2\ \text{keV} \end{array}$$

implique que l'onde α,L=0 soit prépondérante.

- Energies

La bande favorisée est l'une de celles qui est la moins bien caractérisée. Les niveaux disponibles pour former une bande, qu'il serait difficile de croire absente, ne peuvent être ici que ceux situés à 342,9 keV (5/2+) et 445 keV (7/2+), le terme 9/2+ étant plus probablement le niveau de 590 keV.

En ajustant une formule d'énergie à trois paramètres, on trouve pour deux hypothèses différentes sur l'énergie du niveau 9/2 + :

E(9/2 +) keV	A	B	C
590	9,06 keV	200 eV	-53 eV
568	10,14 keV	134 eV	-97 eV

Cette bande est donc très perturbée, la valeur de B étant anormalement élevée, ce qui explique la forte divergence des énergies vis-à-vis de la formule d'énergie habituelle. On doit donc suspecter une interaction rotation-vibration importante.

Le signe positif du paramètre B peut provenir du fait que dans un noyau impair les effets de quatrième ordre de la force de Coriolis (terme B_c) sur la dernière particule célibataire sont positifs dans la plupart des cas et plus importants que le terme négatif (B_Δ) d'effet d'anti-pairing, plus petit dans les noyaux impairs que dans les noyaux pairs du fait de l'augmentation du moment d'inertie du noyau, donc de la diminution de la fréquence de rotation ([KE(56)] , [HA(69)]).

- Alimentations α

Les bilans d'intensités de désexcitation des niveaux de 342,9 et 342,5 keV sont assez imprécis et les intensités d'alimentation α de ces deux niveaux ne peuvent être départagées qu'approximativement. L'analyse des facteurs d'empêchement conduit cependant à :

$$C_o = 0,17 \qquad C_2 \sim 0,03 \qquad C_4 \approx 0,001$$

On se trouve donc bien dans le cas typique d'une bande favorisée avec $C_o \gg C_2$.

- Transitions intra-bande.

Elles sont en concurrence directe avec les transitions interbandes, qui, par suite du facteur $E^{2\lambda+1}$, deviennent plus probables. La seule transition intra-bande détectée est celle de 56,6 keV (5/2 + $\longrightarrow$ 3/2 +), encore est-elle mal caractérisée. Aucune transition n'est décelable à partir du

niveau de 445,1 keV (7/2 +) vers les niveaux 5/2 + et 3/2 + de la bande, par suite de leur énergie, défavorable pour l'observation.

- Couplage de la bande favorisée avec d'autres bandes.

Rappelons que dans le cas d'un couplage d'une bande 3/2 avec une bande 1/2, le coefficient C de la formule d'énergie rotationnelle a pour expression, au premier ordre du calcul des perturbations:

$$C = a \frac{\hbar^2}{2\mathcal{J}} \left| \frac{\hbar^2}{2\mathcal{J}} \frac{\langle \chi_{3/2} | j_+ | \chi_{1/2} \rangle}{W} \right|^2$$

où a est le paramètre de découplage de la bande 1/2

χ_Ω la fonction d'onde intrinsèque

W l'énergie de séparation des états intrinsèques 3/2 et 1/2.

La valeur et le signe de C montre que la bande basée sur le niveau 3/2+ (631) peut être couplée à la bande fondamentale 1/2 (640), mais aussi à la bande basée sur le niveau 1/2+ (651). En effet d'après les valeurs des paramètres de découplage de ces deux bandes, données plus haut, on peut calculer C dans les deux types de couplages, $[VI(66_b)]$ pour $\mu = 0,45$:

η	2	4
1/2(640) ⟷ 3/2(631)	0,088	0,066
1/2(651) ⟷ 3/2(631)	-1,03	-0,56

A titre d'essai, les coefficients de mélange des fonctions d'onde ont été calculés dans l'hypothèse d'un couplage 3/2 (631) ⟷ 1/2 (640)* de la façon suivante : les fonctions d'onde, sans tenir compte du couplage de Coriolis s'écrivent :

* Je remercie très vivement Monsieur R. PIEPENBRING qui a bien voulu effectuer ce calcul.

$$|\Psi_K^I\rangle = \sqrt{\frac{2I+1}{16\pi^2}}\left\{\mathcal{D}^I_{MK}\,\chi_K + (-)^{I+K}\,\mathcal{D}^I_{M,-K}\,\chi_{-K}\right\}$$

On écrit les éléments de matrice de l'Hamiltonien total

$$H = H_{int.} + H_{rot.} + H_{R.P.C.} \quad \left(H_{RPC} = -\frac{\hbar^2}{2\mathcal{J}}\left[I_+ j_- + I_- j_+\right]\right)$$

dans la base des fonctions propres de $H_{int.} + H_{rot.}$, et l'on détermine les paramètres des éléments de matrice de H de manière à rendre compte au mieux des énergies expérimentales.
Dans le cas présent, on considère la base construite avec les états 1/2 (640) et 3/2 (631), dans laquelle les éléments de matrice de H s'écrivent:

$$a_{11} = \varepsilon_{1/2} + \frac{\hbar^2}{2\mathcal{J}}\left[I(I+1) + a(-)^{I+1/2}(I+1/2)\right]$$

$$a_{22} = {}_{3/2} + \frac{\hbar^2}{2\mathcal{J}}\left[I(I+1)\right]$$

$$a_{12} = a_{21} = -\frac{\hbar^2}{2\mathcal{J}}\sqrt{(I-1/2)(I+3/2)}\;\langle\chi_{3/2}\,|\,j_+\,|\,\chi_{1/2}\rangle$$

Les fonctions propres s'écrivent alors :

$$|I\,K\rangle = C^I_{1/2}\,\Psi^I_{1/2} + C^I_{3/2}\,\Psi^I_{3/2}$$

Un test en χ^2 , c'est à dire minimisant la quantité :
$\sum_{IK}(\det. H - E_{IK}U)^2$, où U est la matrice unité
a donné les résultats suivants :

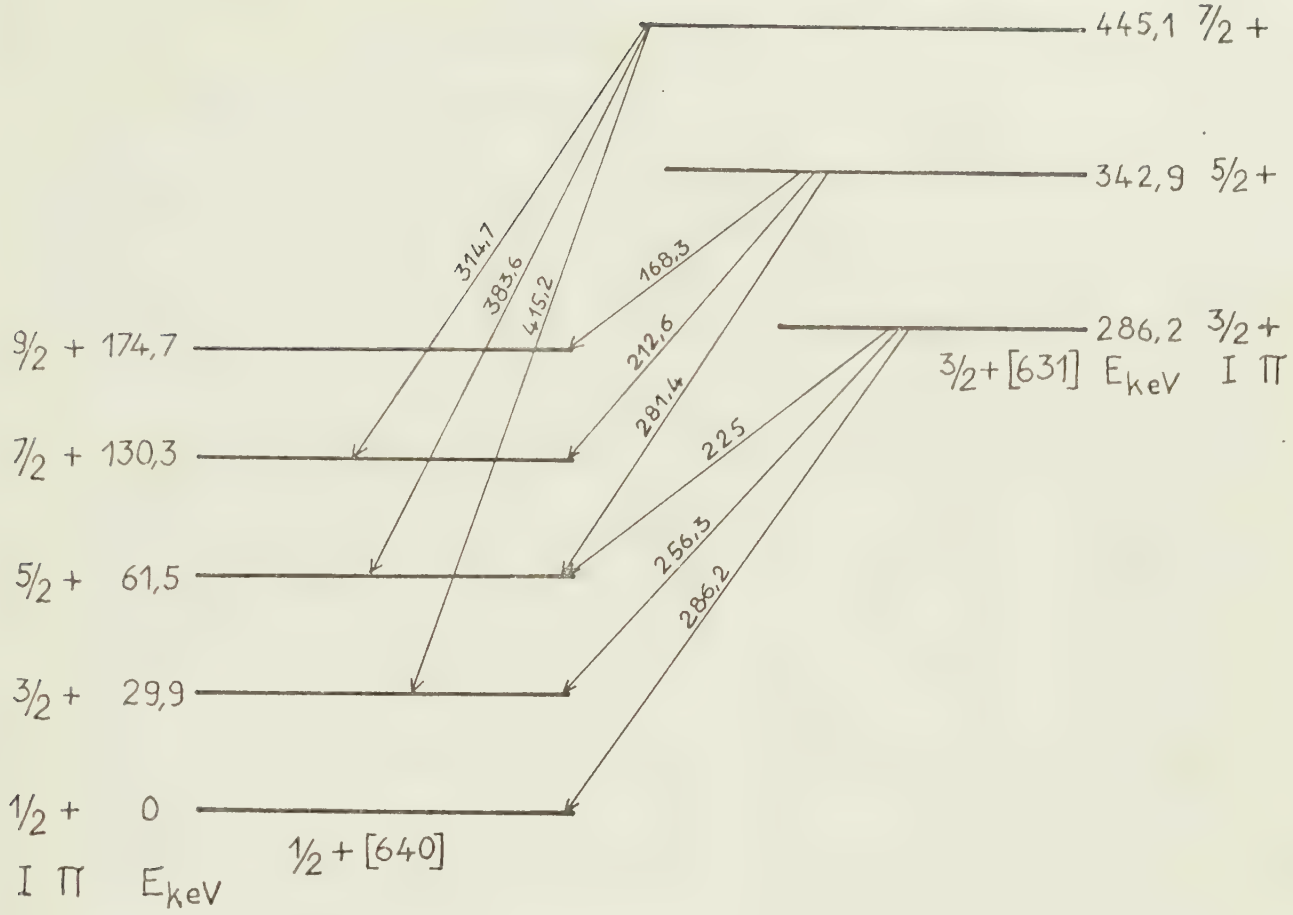


Fig.III–33

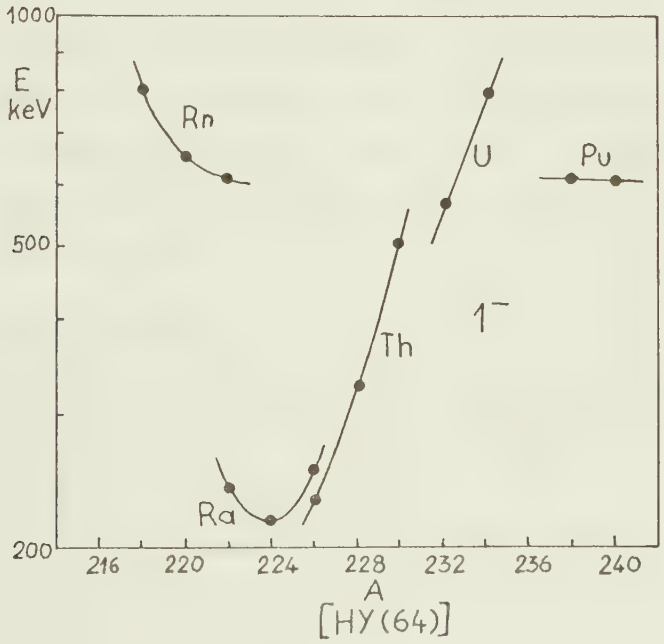


Fig.III-35

- Tableau III - f -

I	K	$E_{exp.}$	$E_{calc.}$	vecteurs propres C 1/2	C 3/2
1/2	1/2	0	0,3	1	0
3/2	1/2	29,9	31,9	0,98	0,20
5/2	1/2	61,5	53,6	0,96	0,28
7/2	1/2	130,3	129,4	0,93	0,38
9/2	1/2	174,7	176,7	0,92	0,40
3/2	3/2	286,2	282,8	- 0,20	0,98
5/2	3/2	342,9	348,4	- 0,28	0,96
7/2	3/2	445,1	442,4	- 0,38	0,93

avec les valeurs des paramètres : $\varepsilon_{1/2} = -4,1$

$\varepsilon_{3/2} = 280,3$

$A = 10,43$

$C' = \langle \chi_{3/2} | j_+ | \chi_{1/2} \rangle = 2,70$

$a = 0,325$

On peut remarquer que les écarts entre énergies expérimentales et calculées sont assez grands, mais il faut noter que ce calcul, qui donne les termes à tous les ordres du couplage de Coriolis, ne tient pas compte de l'interaction rotation-vibration, non négligeable dans ce noyau.

-Transitions inter-bandes.

Les plus intéressantes sont les transitions vers la bande fondamentale, indiquées sur la figure III-33.

-Probabilités de transitions E2:

Le tableau III-g donne, pour les transitions ci-dessus les facteurs d'empêchement Moskowsky et les facteurs d'empêchement par rapport à la probabilité de Nilsson vers les états 1/2 (640) et 1/2 (651).

TABLEAU III- g

E_{keV}	I_i	I_f	F_N Etats finaux 1/2 (640)	1/2 (651)	F_M
286,2	3/2	1/2	0,62	2	14
256,3	3/2	3/2	5	$6,2.\ 10^{-3}$	0,28
225	3/2	5/2	> 10	> 33	> 200
281,4	5/2	5/2	$\leqslant 3,3.\ 10^{-2}$	$\leqslant$ 0,11	$\leqslant$ 0,5
212,6	5/2	7/2	$\leqslant$ 0,25	$\leqslant 1,5.\ 10^{-3}$	$\leqslant$ 0,45
168,3	5/2	9/2	$\leqslant$ 4	$\leqslant 3,3.\ 10^{-3}$	$\leqslant$ 0,09
415,2	7/2	3/2	$\leqslant$ 0,25	$\leqslant$ 0,2	$\leqslant$ 2
383,6	7/2	5/2	$\leqslant 2,6.\ 10^{-2}$	$\leqslant 4,3.\ 10^{-3}$	$\leqslant$ 0,12
314,7	7/2	7/2	$\leqslant$ 1 (-1)	$\leqslant 2.10^{-2}$	$\leqslant$ 0,4

Les signes $\leqslant$ proviennent du fait que pour les niveaux de 342,9 et 445,1 keV, on ne possède qu'une limite supérieure de la période. On peut toutefois effectuer avec plus de précision des rapports de probabilités de transition d'un niveau de la bande 3/2 (631) vers les différents niveaux de la bande 1/2 (640).

TABLEAU III-h

Probabilités relatives des transitions E2 entre les bandes 3/2 (631) et 1/2 (640) :

$B(E2 ; I_i, 3/2 \rightarrow I_f, 1/2) / B(E2 ; I'_i, 3/2 \rightarrow I'_f, 1/2)$

$I_i\ I_f$; $I'_i\ I'_f$	Rapports théoriques $\eta = 2$	*3	4	6	Exper.	Niveau de départ
3/2 3/2 ; 3/2 1/2	5	6,7	8	17	21	286,2
3/2 5/2 ; 3/2 1/2	0,01	0,3	2,2	1	< 0,016	
3/2 5/2 ; 3/2 3/2	0,05	0,2	0,27	0,6	< 0,001	
5/2 7/2 ; 5/2 5/2	2,4	2,5	1,4	0,42	0,3	342,9
5/2 9/2 ; 5/2 5/2	0,011	0,06	0,12	0,06	0,45	
5/2 9/2 ; 5/2 7/2	0,0045	0,025	0,08	0,15	1,6	
7/2 5/2 ; 7/2 3/2	0,17	1,3	0,4	0,12	10	445,1
7/2 7/2 ; 7/2 3/2	8	0,57	0,2	0,06	> 1	
7/2 7/2 ; 7/2 5/2	0,5	0,5	0,5	0,5	> 0,1	

* valeurs interpolées

On peut noter que les désaccords sont généralement importants ainsi que la grande sensibilité de plusieurs rapports au choix de η. Des tableaux de même type avec les configurations 3/2 (631) $\rightarrow$ 1/2 (651), 1/2 (640) $\rightarrow$ 1/2 (651) etc. montrent qu'il faudra

certainement recourir pour les deux bandes à des mélanges complexes d'autant plus difficiles à déterminer que η reste un paramètre ajustable.

Il faut noter que les transitions E2 de type rotationnel (voir figure III-29) ont des probabilités de l'ordre de 200 unités Moskowsky, tandis que, en règle générale, les probabilités de transition de particule (E2,$\Delta K = 1$) sont environ 10^3 fois plus petites, et les transitions E2 ($\Delta K = 2$) de 10 à 100 fois plus faibles que ces dernières.
Par rapport aux probabilités de Nilsson, les transitions E2(ΔK=1) sont accélérées d'un facteur 10^2 à 10^4, tandis que les E2(ΔK=2) ont des facteurs d'empêchement F_N de 10^{-1} à 10.
Un faible mélange d'états intrinsèques peut donc entraîner une augmentation importante des probabilités de transitions E2 entre les différents états des bandes rotationnelles basées sur ces configurations.

Par ailleurs, les corrélations de paires, lorsqu'il y a lieu d'en tenir compte, affectent la partie collective de la transition et la partie de type individuel de manières différentes. Pour des raisons de parité vis-à-vis du renversement du temps, la force de pairing réduit la composante individuelle d'un facteur pouvant aller jusqu'à 100, tandis que la composante collective est peu affectée.

Seul un traitement des probabilités de transition tenant compte à la fois du facteur de réduction de pairing :

$$R_E^2 = (u_i\, u_f - v_i\, v_f)^2$$

et du mélange des bandes de rotation décrit par l'hamiltonien :

$$H_1' = -\frac{\hbar^2}{2J_0}\left[1 + 3\frac{a_0^2}{\beta_0^2} + 2\frac{a_2^2}{\beta_0^2}\right]\left[I_+ j_- + I_- j_+\right] ,$$

qui tient compte du terme de Coriolis habituel corrigé de l'intéraction rotation-vibration, arrive à reproduire les probabilités de transition expérimentales (Faessler [FA (66)]).

En ce qui concerne les transitions ayant des facteurs d'empêchement importants, on peut seulement remarquer que cela peut être dû au couplage avec les bandes vibrationnelles correspondant à l'état fondamental, si les phases des amplitudes de transition de particule et de transition collective (due au couplage avec les vibrations γ) sont de signes opposés.

C-7 Bande rotationnelle basée sur le niveau de 329,9 keV 1/2-

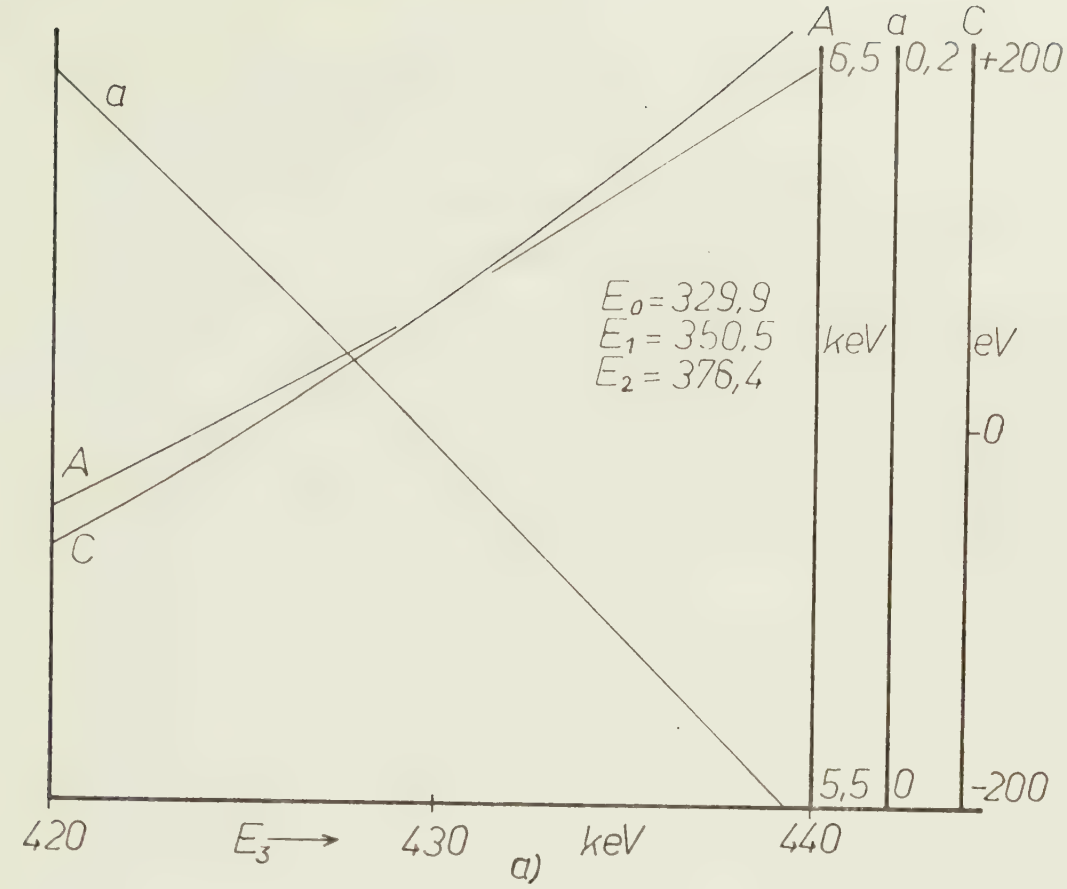
Le niveau de spin 1/2- le plus bas en énergie est celui de 329,9 keV (sur la figure III-25 , le spin 3/2- a été porté entre-parenthèses pour ce niveau comme deuxième possibilité, moins probable que le spin 1/2-, ce dernier étant fixé par la nature E2 pure, aux barres d'erreurs près, du rayonnement de 206,1 keV). Plusieurs choix de niveaux 3/2- et 5/2- sont possibles pour construire une bande rotationnelle sur ce niveau, mais un seul finalement présente des écarts d'énergies acceptables, ainsi que des facteurs d'empêchement α raisonnables. Ce sont les niveaux 350,5 keV (3/2-) et 376,4 keV (5/2-). Pour les trois premiers niveaux de la bande, les alimentations α font intervenir respectivement les moments angulaires :

L = 1, L = 1 et 3, L = 1 et 3 pour les spins 1/2-, 3/2-, 5/2-.

Le niveau suivant 7/2-, correspond à des valeurs de L = 3 et 5, on peut donc s'attendre à une importante augmentation du facteur d'empêchement F.

- Energies

La figure III-34 a) montre comment un premier choix s'opère au moyen d'une formule contenant les termes A, a et C que l'on calcule en fonction de l'énergie du troisième niveau de spin 7/2-. Le schéma de la figure III-25 montre que seul le niveau de 423,8 keV pourrait correspondre à ce troisième niveau. Le fort facteur d'empêchement du niveau 7/2- montre que l'on retrouve ici la régularité habituelle vis-à-vis de la bande


A
a
C
6,5
0,2
+200
a
$E_0 = 329,9$
$E_1 = 350,5$
$E_2 = 376,4$
keV
eV
0
A
C
5,5
0
-200
420
$E_3 \longrightarrow$
430
keV
440
a)

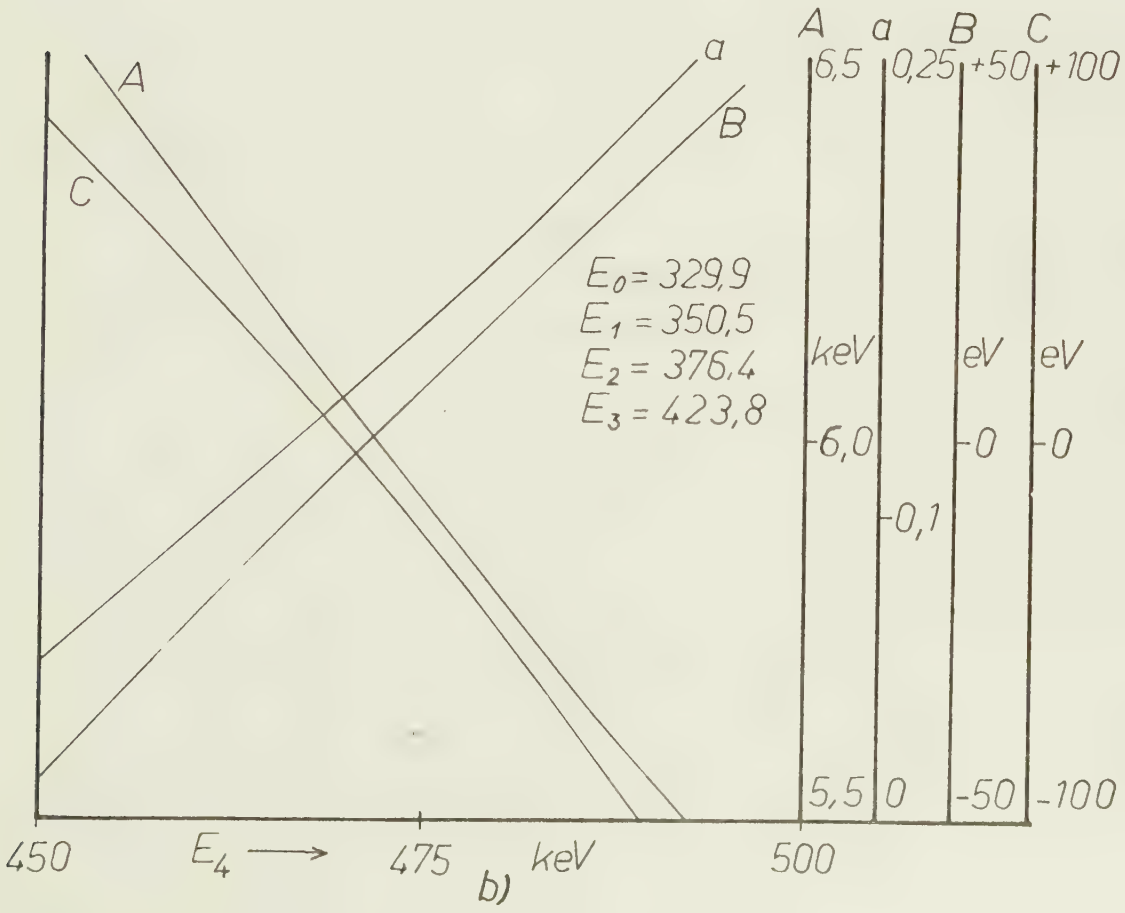

A
a
B
C
6,5
0,25
+50
+100
A
a
B
C
$E_0 = 329,9$
$E_1 = 350,5$
$E_2 = 376,4$
$E_3 = 423,8$
keV
eV
eV
-6,0
0
0
-0,1
5,5
0
-50
-100
450
$E_4 \longrightarrow$
475
keV
500
b)

Fig.III-34

favorisée : l'alimentation α (L = 1) est favorisée, de même les transitions E1 qui relient la bande 1/2- à la bande favorisée 43,8 keV (1/2- $\longrightarrow$ 3/2+), 64,3 keV (3/2- $\longrightarrow$ 3/2+), 33,5 keV (5/2- $\longrightarrow$ 5/2+). Pour ces raisons, on peut prévoir que le niveau 9/2-, dont le facteur d'empêchement α aura aussi une valeur élevée, sera difficile à percevoir. La figure III-34-b montre le stade suivant du calcul : le niveau de 423,8 keV ayant été adopté comme quatrième niveau de la bande, on applique la formule d'énergie complète à quatre paramètres que l'on calcule en fonction de l'énergie du quatrième niveau.

L'ensemble de ces deux figures montre que les valeurs raisonnables de A sont obtenues pour les valeurs de B et a faibles ($a < 0,1$), le quatrième niveau pouvant se trouver aux environs de 470 keV, ce qui expliquerait qu'il soit masqué par l'intense transition α vers le niveau de 460,2 keV.

Le diagramme de Nilsson montre que dans cette région on peut s'attendre à trouver l'état 1/2 (501), mais la bande construite sur ce niveau devrait avoir un paramètre de découplage bien plus élevé ($\sim$0,8) que celui trouvé ici.

Ceci nous a conduit à admettre que cette bande de rotation peut provenir du couplage du neutron célibataire avec les états de vibrations octupolaires du coeur.

Il faut remarquer que le radium 223 se situe dans la région où les niveaux de vibrations octupolaires $I = 1^-$ (K = 0) sont situés très bas en énergie, aux environs de 200 keV, comme le montre la figure III-35. C'est ce qui en a facilité l'observation, car habituellement ces niveaux sont situés trop haut en énergie pour être décélés aisément.

Tout ceci, joint aux probabilités des transitions E1 citées plus haut (figure III-27), permet de proposer pour cette bande la configuration 1/2- $[1/2\ (640),\ 1^-]$.

C-8 Bandes rotationnelles peu développées

Expérimentalement, il y a de nombreuses raisons qui rendent une bande collective difficile à détecter : l'une des raisons majeures est l'alimentation α qui peut diminuer de façon importante lorsqu'on passe des transitions dont l'intensité comprend un coefficient C_L , à celles où C_L ne figure plus et où C_{L+2} devient le terme dominant.

C'est ainsi que l'on conçoit qu'il y ait des bandes dont seuls deux ou trois membres sont détectés, les niveaux trop faiblement alimentés étant masqués par les raies α plus intenses.

Dans ce qui suit nous donnons donc des présomptions pour une interprétation possible, sans que les preuves soient suffisamment nombreuses.

- Niveaux 234,9 et 280,3 keV

Ces deux niveaux peuvent valablement former le début de la bande construite sur le niveau 3/2+ (642) qui est attendu vers cette énergie. Les alimentations α faibles justifient que le niveau 7/2+, qui devrait se situer dans la région 350 à 370 keV, soit masqué par les groupes α intenses qui se présentent au dessus du niveau de 286,2 keV.

En supposant, ce qui est raisonnable, que $C_4 \ll C_2$, on trouve approximativement :

$$C_0 \sim 5{,}8\ (-3) \qquad C_2 \sim 3{,}6\ (-3)$$

La faible valeur de C_0 permet de penser que cette bande est construite sur un état de particule. En effet C_0 ne peut en général prendre de valeur élevée que pour une transition α favorisée .

-Niveaux 369,4 keV (1/2,3/2-), 404,9 keV (3/2,5/2-), 442,5 keV (3/2 à 7/2-).

Par leurs facteurs d'empêchement α et par leurs différences d'énergies, ces trois niveaux peuvent valablement être groupés en famille rotationnelle. Un état intrinsèque 3/2- parait peu probable ici, car cela conduirait à des valeurs des paramètres B et C très élevées. On peut proposer ici une bande construite sur l'état 1/2- (501), attendu à cette énergie.

Ne possédant que deux différences d'énergies, on ne peut donner que des ordres de grandeur pour les paramètres de la formule des énergies rotationnelles. On a, avec des valeurs raisonnables de B (< 0) et C:

$$A \sim 10 \text{ keV} \quad \text{et} \quad a = 0,2 \text{ à } 0,4$$

- Niveaux 432,4 keV (3/2-), 460,2 keV (5/2-, 7/2-), 514,6 keV (7/2, 9/2-)

Ces trois niveaux peuvent éventuellement être groupés en une bande, avec $A \sim 8,7$ keV

Le système d'équations des intensités d'alimentation α est sous-déterminé, car on ne dispose que de 3 données pour déterminer 5 paramètres :

Niveaux	432,4	460,2	514,6
Spin	3/2-	5/2-	7/2-
L	1-3	1-3	3-5
C_L , b_L	C_1, C_3, b_3	C_1, C_3, b_3	C_3, b_3, C_5, b_5
1/F	1,1 (-2)	1,24 (-2)	2,8 (-3)

On peut seulement noter que $C_1 \gg C_3$. Le seul état de Nilsson 3/2- disponible a été utilisé pour le niveau de 79,8 keV , d'autre part, si cette bande était de type vibrationnel, elle pourrait résulter du couplage du nucléon célibataire dans l'état 3/2+ (642) avec les vibrations octupolaires du coeur.

Mais la différence d'énergie entre le niveau de particule à 234,9 keV et le niveau de vibration octupolaire ne serait que de l'ordre de 200 keV. La question reste donc ouverte.

C-9 Cas particuliers.

-Niveau 334,5 keV (3/2+)

Ce niveau présente un caractère très spécial. Les faits expérimentaux sont les suivants:

- spin 3/2+ certain.
- existence d'une composante E0 dans la transition de 304,5 keV reliant ce niveau au niveau 3/2+ de la bande fondamentale.
- transitions E2 vers les états 1/2,3/2,5/2,7/2 de la bande fondamentale, ayant des facteurs $F_M \lesssim 1$.
- présence d'une transition E2 de 48,3 keV très accélérée vers l'état 3/2 (631) à 286,2 keV.
- alimentation très permise pour ce niveau (peu différente de celle dite "favorisée" vers le niveau de 286,2 keV), mais avec une forte contribution des ondes L = 2 indiquée par les corrélations angulaires $\alpha - \gamma$.
- enfin, impossibilité d'associer une famille rotationnelle à ce niveau.

L'ensemble de ces données, compte tenu du fait que l'on ne dispose pas d'autre état intrinsèque 3/2+ dans le diagramme de Nilsson concernant cette région, suggèrerait plutôt un niveau à caractère vibrationnel.

Un couplage de l'état 3/2-(761) avec les vibrations octupolaires du coeur semble être à écarter ici du fait de la présence et de l'accélération des transitions E2 mentionnées ci-dessus.

Malgré l'énergie assez basse de ce niveau, la plupart des caractéristiques énumérées indiqueraient plutôt un couplage de l'état fondamental avec les vibrations γ, sans que l'absence de bande rotationnelle soit pour autant expliquée. On ne possède pas de données suffisantes concernant les énergies des états 2+ à un phonon dans les noyaux pairs de radium. On peut seulement situer le radium par rapport aux noyaux lourds bien déformés ou aux noyaux presque sphériques, comme le montre la figure III-35 bis qui représente une systématique des rapports E(2'+)/E(2+) de

l'énergie du deuxième niveau 2+ à l'énergie du premier niveau 2+, donnée par Nathan et Nilsson [SI (66) p.635]. D'après cette systématique, il semble que pour les isotopes de radium les niveaux de vibrations γ soient situés relativement bas en énergie, ce qui vient justifier l'hypothèse donnée ci-dessus d'un état 3/2+ [1/2 (640), 2+].

-Niveau 342,5 keV (1/2,3/2+).

Le niveau détecté à 343 keV par spectrométrie magnétique α, a pu,grâce à des mesures précises d'énergies d'électrons de conversion et grâce aux coïncidences γ-γ, être dédoublé en deux niveaux dont l'un, d'énergie 342,5 keV, de spin 1/2 ou 3/2 + se présente comme un niveau isolé auquel on ne peut donner une étiquette individuelle.

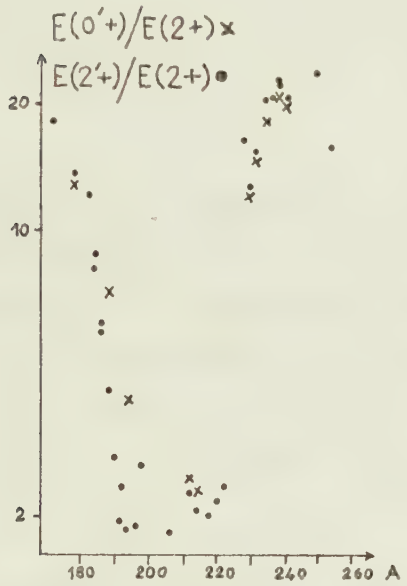


Fig. III-35 bis

On peut remarquer sur la figure III-35b, qui donne aussi la variation du rapport de l'énergie de l'état 0+ à un phonon à l'énergie du premier état 2+ dans les noyaux pair-pairs,que l'on peut également attendre l'état de vibration β assez bas en énergie et que le niveau de 342,5 keV pourrait être l'état 1/2 + [1/2 (640) , 0 +].

Ceci serait compatible avec la relative accélération de la transition E2 vers l'état fondamental: F_M (342,5 E2)$\leqslant$0,15.

Il est néanmoins curieux que les énergies des états de vibrations octupolaires, β et γ ainsi proposés soient si proches. Les hypothèses formulées ici pour l'interprétation de ces deux niveaux demanderaient à être vérifiées par une connaissance plus approfondie des noyaux pairs de radium.

- Niveau 50,2 keV (3/2 -) : nos connaissances sur ce niveau n'ont pas augmenté depuis ces dernières années. Le facteur d'empêchement α exceptionnellement élevé de ce niveau ($F = 8.10^5$) nous laisse toujours penser qu'une déformation négative permettrait d'expliquer cette anomalie. L'analyse de la probabilité de la transition E1 de 50,2 keV vers l'état fondamental, en essayant différentes configurations, laisse comme possibilité l'état 3/2 - (501) avec une déformation négative du noyau, encore faut-il être très prudent sur cette hypothèse qui nécessiterait de tester systématiquement toutes les probabilités des transitions qui alimentent le niveau de 50,2 keV à partir des niveaux supérieurs, tout en tenant compte des mélanges de configurations.

- Niveau $\sim$ 24 keV

Comme il a été signalé dans le paragraphe traitant des coïncidences γ-γ, un rayonnement de $\sim$ 24 keV a toujours été trouvé en coïncidences avec les rayonnements intenses alimentant le niveau de 50,2 keV, ce qui peut suggérer l'existence d'un niveau à $\sim$ 24 keV, vraisemblablement de spin 1/2 -. Mais il convient d'être très prudent sur cette hypothèse en l'absence d'autres cascades venant la confirmer.

C-10 Niveaux de grande énergie.

Au-dessus de 500 keV, on trouve quelques niveaux sans ou avec peu de transitions de désexcitation détectées, ce sont les niveaux de 568, 441, 685, 713, 730 keV. On peut admettre qu'il s'agit vraisemblablement d'états de spin élevé, appartenant aux diverses bandes de rotations examinées ci-dessus, et dont la désexcitation procède par des transitions intra-bande d'intensités trop faibles vis-à-vis des transitions entre niveaux de plus basse énergie et mieux alimentés par l'émission α.

Vers 784 keV,les niveaux de spin relativement bas réapparaissent,qui se désexcitent principalement vers les premiers niveaux de la bande fondamentale.

D'après ce que nous avons admis plus haut pour les énergies des premiers niveaux à caractère vibrationnel,nous devons nous attendre dans cette région à trouver les niveaux vibrationnels à 1 phonon bâtis sur des états intrinsèques tel l'état à transition favorisée α,ainsi que les états à 2 phonons bâtis sur l'état fondamental.En fait,un très grand nombre d'états à caractère vibrationnel peuvent se concevoir,présentant le cas échéant des bandes rotationnelles,à quoi il convient d'ajouter les nombreuses possibilités de niveaux à 3 quasiparticules.

Un guide qualitatif restera toujours que le facteur d'empêchement α d'un niveau vibrationnel est plus petit que celui de l'état intrinsèque correspondant,sauf pour le niveau à alimentation α favorisée [BJ(63)].Bien entendu,l'observation d'un niveau d'énergie élevée devient impossible dès que le facteur d'empêchement est tant soit peu élevé,et de nombreux niveaux doivent par là échapper à l'observation.C'est pour cette raison que cette partie du schéma n'est donnée qu'à titre indicatif et ne sera pas examinée en détail ici,car elle serait hautement spéculative dans l'état actuelle des connaissances : l'absence de coefficients de conversion ne permet pas d'identifier avec certitude spins et parités.Nous avons cependant porté sur le schéma de la figure III-26 les "fourchettes" de spins possibles, qui sont assez larges,compte tenu de l'existence éventuelle des transitions E2 entre bandes γ vibrationnelles et bande rotationnelle fondamentale,et plus généralement,du caractère compétitif des transitions électriques dans ce domaine d'énergie.

Résumé des bandes. La figure III - 36 résume les propositions de bandes et de configurations qui ont été faites plus haut. Ces propositions tiennent compte des possibilités offertes par les modèles et présentent évidemment des degrés de certitude variables. Par exemple l'interprétation de la bande 3/2 - (débutant à 432,4 keV) comme bande octupolaire découle essentiellement du manque d'états intrinsèques possibles et comporterait comme corrolaire ici, que la distance en énergie qui sépare un état intrinsèque de la bande octupolaire correspondante diminue avec l'énergie de l'état intrinsèque Le "modèle de Bohr-Mottelson-Nilsson" permet donc de discuter un schéma de niveaux d'un noyau à déformation moyenne et de suggérer des configurations dominantes et des mécanismes de formation de niveaux de bas spin. Cependant, il apparaît que les mélanges à introduire sont plus complexes que dans une région bien déformée, que les moments d'inertie sont moins stables et qu'il faut prévoir des variations de la déformation.

Pour un tel noyau mou, le problème de rendre compte au mieux des énergies expérimentales devient vite sous-déterminé avec la complexité croissante des modes d'interaction envisagés. On doit donc procéder par divers essais et tester par les probabilités de transition, qui sont elles-mêmes très sensibles aux paramètres μ et η choisis et aux différents modes de couplage.

Notons enfin, qu'il ne faut pas à priori éliminer la possibilité de déformations négatives (niveau de 50,2 keV), mais que là-aussi des calculs systématiques de probabilités de transition sont nécessaires.

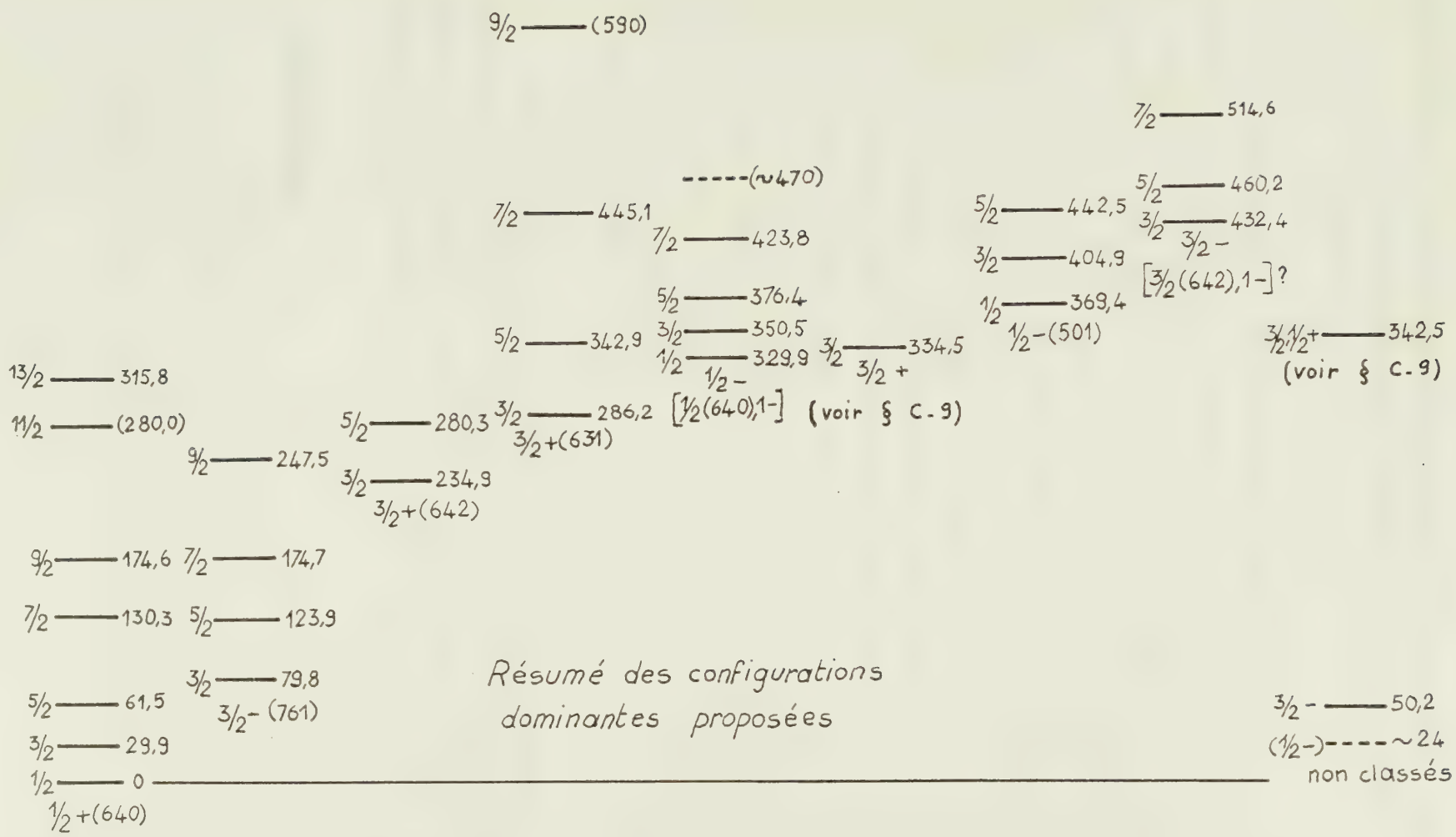

9/2 (590)
7/2 514,6
-----(~470)
5/2 460,2
7/2 445,1
7/2 423,8
5/2 442,5
3/2 432,4
3/2 -
3/2 404,9
[3/2(642),1-]?
5/2 376,4
1/2 369,4
3/2 350,5
1/2 -(501)
5/2 342,9
1/2 329,9
3/2 334,5
3/2 +
3/2,1/2+ 342,5
(voir § C-9)
1/2 -
13/2 315,8
[1/2(640),1-] (voir § C-9)
11/2 (280,0)
5/2 280,3
3/2 286,2
3/2+(631)
9/2 247,5
3/2 234,9
3/2+(642)
9/2 174,6
7/2 174,7
7/2 130,3
5/2 123,9
3/2 79,8
5/2 61,5
3/2- (761)
3/2 29,9
1/2 0
1/2+(640)
Résumé des configurations
dominantes proposées
3/2 - 50,2
(1/2-)----~24
non classés

Fig.III-36

CHAPITRE IV - Effets extra-nucléaires - Phénomènes liés à l'observation d'atomes en vol à la suite du recul α

Lorsqu'une lacune en électrons est crée dans une couche électronique de l'atome, que ce soit par bombardement par électrons ou rayons X, ou par un processus de capture ou de conversion interne, l'atome revient à une énergie d'équilibre : soit par émission d'un photon X, soit par le processus non radiatif de l'effet Auger. Dans ce cas, la lacune initiale est comblée par un électron d'une couche plus externe, et un autre électron est éjecté vers un état du continu, son énergie étant déterminée par conservation de l'énergie totale du système. Dans le cas de l'émission d'un photon X, l'état initial étant l'atome mono-ionisé dans une couche, on a affaire à un état final dans lequel l'atome est mono-ionisé, mais dans une couche plus externe que la couche initiale, tandis que dans le cas de l'effet Auger l'état final est un atome doublement ionisé dans des couches plus externes que la couche initiale.

Lors de l'étude par spectromètrie de conversion à haute résolution des désintégrations de ^{227}Th et ^{233}Pa, nous avons examiné les spectres Auger KLL de ces éléments afin de les comparer, en énergie et en intensité, aux calculs théoriques.

A - Effet Auger

C'est en 1925 que P. Auger [AU (25)] , en observant par chambre de Wilson les électrons émis par des substances irradiées par rayons X, interpréta certains de ces électrons comme étant dûs à des transitions

non radiatives dans l'atome. Ce processus, qui porte depuis le nom d'effet Auger, après n'avoir été l'objet, pendant longtemps, que de peu de recherches expérimentales et théoriques, a connu un renouveau d'intérêt avec le développement des connaissances de la structure atomique et aussi avec les progrès de la spectrométrie de conversion.

Différentes hypothèses de couplage entre les lacunes finales ont été utilisées pour la description des transitions Auger, en négligeant certains termes dans les couplages extrêmes tels que le couplage L-S et couplage j-j purs, ou bien, plus récemment, le couplage dit "intermédiaire" qui a permis de rendre compte d'une façon plus satisfaisante des faits expérimentaux.

Après les premiers travaux de Wentzel en 1927 [WE (27)] qui a trouvé, dans une approximation non relativiste, que la probabilité totale de transition Auger est indépendante de Z, Pincherle [PI (35)] a calculé les probabilités de transition Auger pour différents atomes jusqu'au Krypton, toujours dans une approximation non relativiste, avec des fonctions d'ondes hydrogénoïdes et sans effet d'écran. Dans l'approximation mono-électronique non relativiste, il y a eu quelques calculs d'énergies de liaison pour certaines valeurs de Z et des calculs de probabilités de transitions Auger (Ramberg et Richtmyer [RA (37)] pour l'or).

Dans l'hypothèse d'un couplage L-S pur, Gordon [GO (28)] avait donné l'expression théorique des énergies de liaison en utilisant des fonctions d'ondes hydrogénoïdes avec écran, en tenant compte des effets de spin et des effets relativistes ; Kennard et Ramberg [KE (34)] ont calculé la partie des effets relativistes et de l'effet de spin pour l'atome de

sodium. Toujours dans ce type de couplage, ont été calculées des probabilités de transition Auger par Burhop [BU (35)] , Rubenstein et Snyder [RU (55)] pour des atomes légers et moyens (Z = 18, 36, 47), et Callan [CA (61)] pour une quarantaine de valeurs de Z comprises entre 12 et 80. Ce sont ces calculs d'amplitudes qui ont été utilisés pour exprimer les probabilités de transition Auger dans le couplage dit intermédiaire, introduit pour la première fois dans l'étude du spectre Auger par Asaad et Burhop [AS (58)] . Par la suite ces calculs ont été perfectionnés par Asaad [AS (63)] , [AS (65)] , ainsi que par Hörnfeldt [HO (62)] dans une étude semi-empirique des énergies des raies Auger.

Enfin dans le cadre du couplage j-j pur entre lacunes finales, Asaad [AS (59)] a fait un calcul relativiste pour le mercure, utilisant la méthode de Möller avec des fonctions d'onde de champ self-consistant. D'autre part Listengarten [LI (62)] , plus récemment, a calculé les probabilités de transition Auger en utilisant des fonctions d'ondes relativistes, toujours dans le couplage j-j, pour une vingtaine de valeurs de Z comprises entre Z = 65 et 93 (modèle Thomas - Fermi - Dirac).

Dans <u>l'approximation mono-électronique non relativiste,</u> où l'on considère les électrons dans le potentiel central dû au noyau, en négligeant l'intéraction électrostatique et l'intéraction spin-orbite, l'Hamiltonien du système est simplement :

$$H = \sum_{i=1}^{N} \left[\frac{1}{2m} \nabla_i^2 + V(r_i) \right]$$

et dans l'état final de la transition Auger, trois configurations sont possibles :

$$(2s)^0 \, (2p)^6$$

$$(2s)^1 \, (2p)^5$$

$$(2s)^2 \, (2p)^4$$

(par la suite nous mentionnerons seulement les configurations des couches (2s) et (2p), étant bien entendu que les couches plus externes sont remplies).

Si l'on tient compte d'une part de l'interaction électrostatique entre les électrons de la forme $\sum_{i \neq j=1}^{N} \frac{e^2}{r_{ij}}$ et d'autre part de l'interaction magnétique de chaque électron avec le champ magnétique effectif créé dans le mouvement de l'électron autour du noyau, intéraction de la forme :

$$\sum_{i=1}^{N} \xi(r_i) \vec{L}_i \vec{S}_i$$

l'Hamiltonien total s'écrit :

$$H = \sum_{i=1}^{N} \left(\frac{1}{2m} \nabla_i^2 + V(r_i)\right) + \sum_{i=1}^{N} \xi(r_i) \vec{L}_i \vec{S}_i + \sum_{i \neq j=1}^{N} \frac{e^2}{r_{ij}}$$

Nous allons envisager successivement les différents types de couplage entre lacunes finales, et leurs conséquences quant au nombre, quant à l'énergie et à l'intensité des transitions Auger.

A - I - Energies.

Les figures IV-1 et IV-2 représentent à titre d'illustration les énergies des raies Auger que nous avons calculées dans les différentes hypothèses de couplage entre les lacunes finales en électrons, pour deux valeurs de Z très différentes (Z = 40 et 92).

A - I - 1 - Couplage j-j pur.

Dans cette approximation, l'énergie d'interaction coulombienne entre lacunes finales est négligée par rapport à

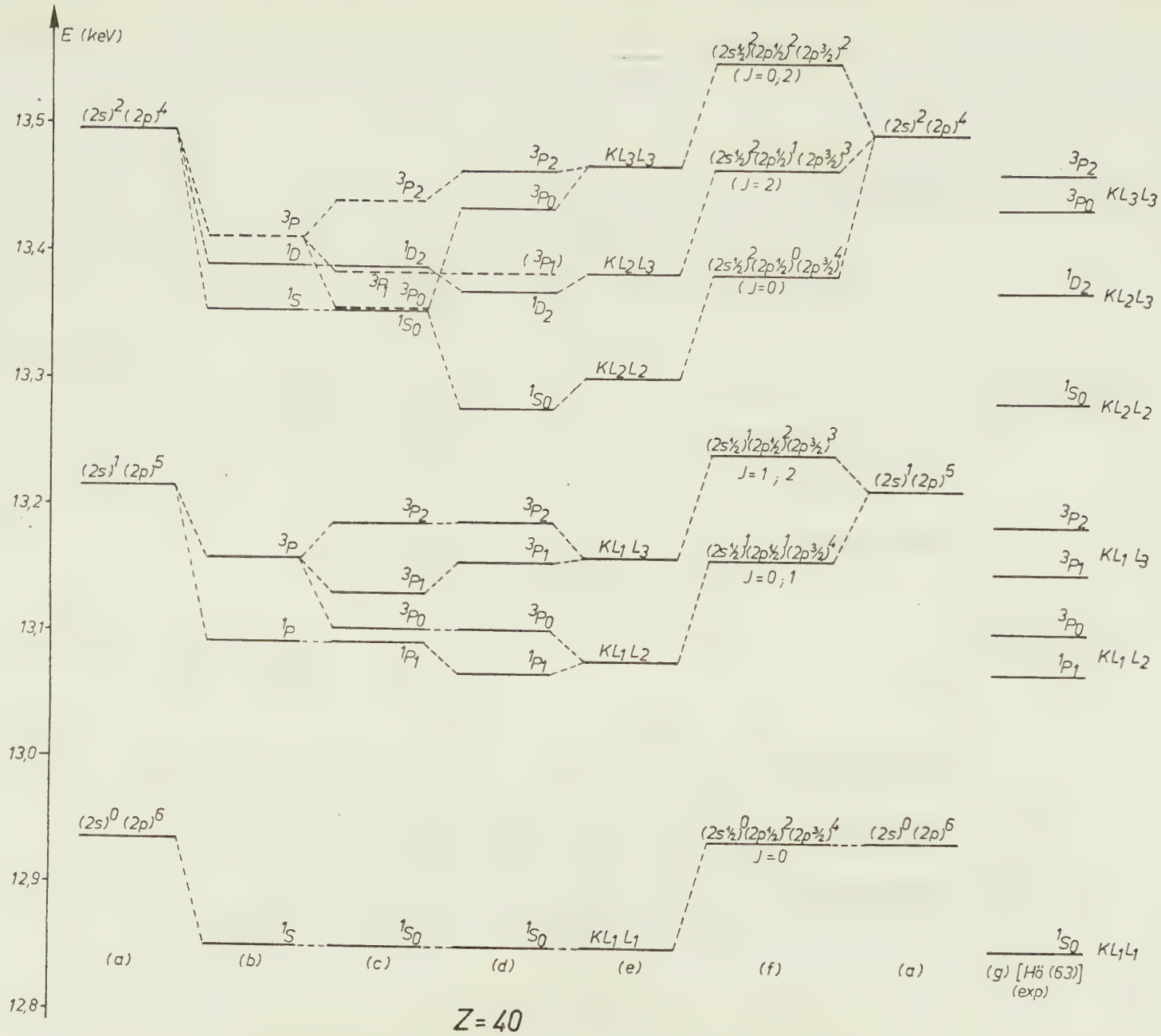

E (keV)
13,5
13,4
13,3
13,2
13,1
13,0
12,9
12,8
(2s)² (2p)⁴
(2s)¹ (2p)⁵
(2s)⁰ (2p)⁶
³P
¹D
¹S
¹P
³P₂
³P₁
³P₀
¹D₂
¹S₀
¹P₁
KL₃L₃
KL₂L₃
KL₂L₂
KL₁L₃
KL₁L₂
KL₁L₁
(2s½)²(2p½)²(2p3/2)²
(J = 0,2)
(2s½)²(2p½)¹(2p3/2)³
(J = 2)
(2s½)²(2p½)⁰(2p3/2)⁴
(J = 0)
(2s½)¹(2p½)²(2p3/2)³
J = 1 ; 2
(2s½)¹(2p½)¹(2p3/2)⁴
J = 0 ; 1
(2s½)⁰(2p½)²(2p3/2)⁴
J = 0
(a)
(b)
(c)
(d)
(e)
(f)
(a)
(g) [Hö (63)]
(exp)
Z = 40

Fig. IV_1

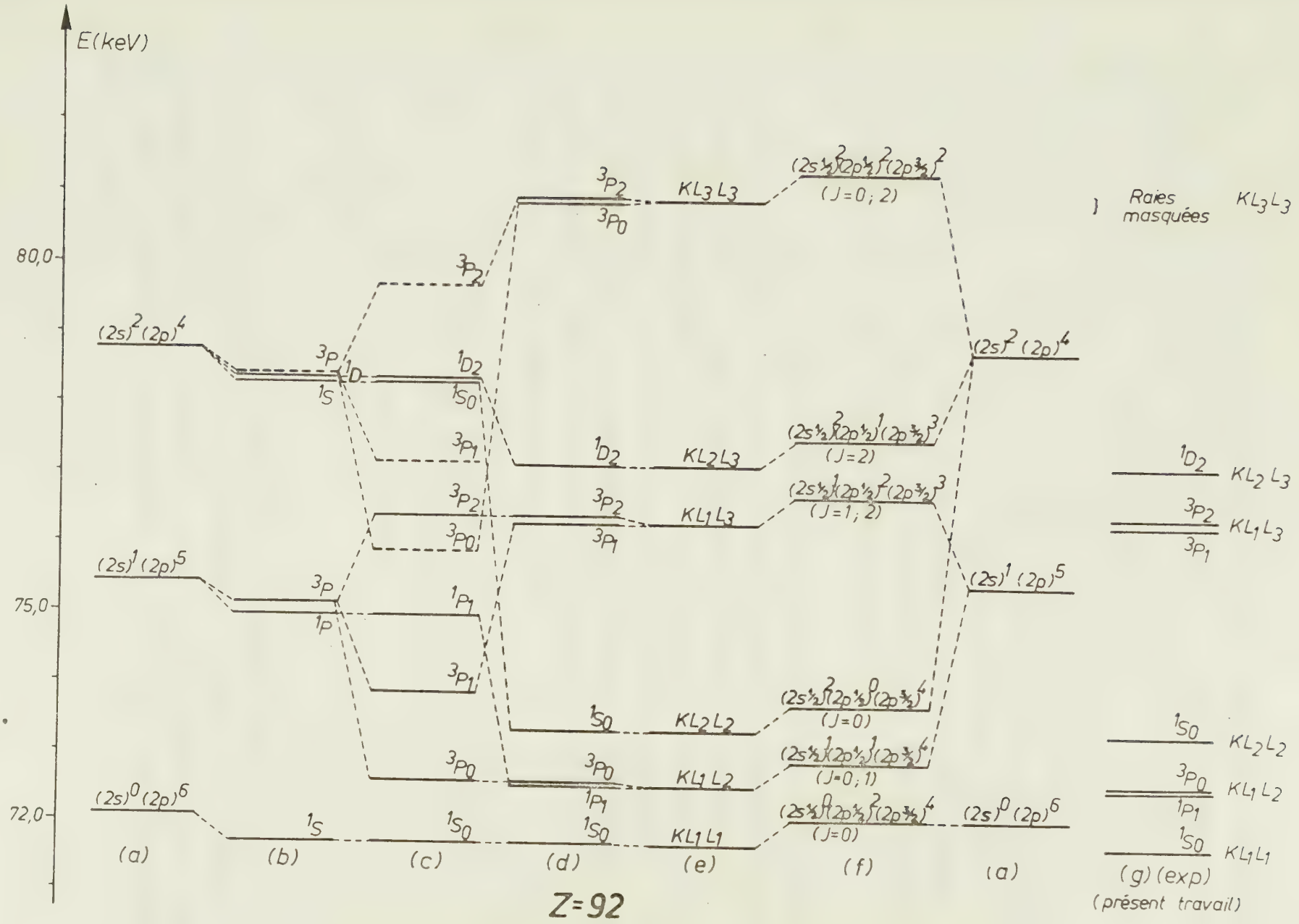

E(keV)
80,0
75,0
72,0
(2s)^2(2p)^4
(2s)^1(2p)^5
(2s)^0(2p)^6
3P
1D
1S
1P
3P2
1D2
1S0
3P1
3P0
1P1
KL3L3
KL2L3
KL1L3
KL2L2
KL1L2
KL1L1
(2s½)^2(2p½)^2(2p3/2)^2
(J=0; 2)
(2s½)^2(2p½)^1(2p3/2)^3
(J=2)
(2s½)^1(2p½)^2(2p3/2)^3
(J=1; 2)
(2s½)^2(2p½)^0(2p3/2)^4
(J=0)
(2s½)^1(2p½)^1(2p3/2)^4
(J=0; 1)
(2s½)^0(2p½)^2(2p3/2)^4
(J=0)
Raies masquées
(a)
(b)
(c)
(d)
(e)
(f)
(g) (exp)
(présent travail)
Z=92

Fig. IV - 2

leur énergie de couplage spin-orbite. C'est une approximation qui est souvent utilisée pour les atomes de Z élevé, en tenant compte quelquefois des effets relativistes. Dans cette hypothèse, le spectre Auger KLL a 6 composantes (Fig IV-1 et 2 (f)) correspondant aux différentes combinaisons d'ionisation dans les trois couches L, la dégénérescence étant levée pour la couche (2p) en (2p 1/2) et (2p 3/2) par l'interaction spin-orbite. Les valeurs de J permises par le principe de Pauli sont données sur les figures IV-1 et 2 pour chacun des états. Si l'on tient compte d'une interaction coulombienne, considérée comme une perturbation, la dégénérescence est levée par rapport à J.

Sur les figures IV-1 et 2, dans la colonne (e) sont portées les énergies des raies Auger KLL dans le cadre du couplage j-j pur en tenant compte, suivant une méthode semi-empirique utilisée souvent [BE (54)] , [ML (55)] , d'un coefficient d'écran pour les couches L concernées. En effet, l'électron éjecté a une énergie de liaison supérieure à l'énergie de liaison dans l'atome neutre, l'état d'ionisation de l'atome au moment de l'éjection de l'électron conduisant à :

$Z_{effectif} = Z + \Delta Z$ où nous avons évalué :

$\Delta Z \sim 0,57$ pour les couches L_1 et L_2

et $\Delta Z \sim 0,85$ pour la couche L_3

dans le cas de Z = 92.

Par la suite, bien que la dénomination KL_iL_j des différents raies provienne du couplage j-j, nous l'emploierons néanmoins pour d'autres types de couplage, et en particulier dans le cadre du couplage intermédiaire, comme il est devenu habituel de le faire.

A - I - 2 - Couplage L-S pur.

Dans le modèle de Russel - Saunders, souvent utilisé pour les atomes de Z faible, on tient compte de l'interaction électrostatique entre les électrons en négligeant l'interaction spin-orbite (Fig. IV-1 et 2 (b)), ou en la traitant comme faible vis-à-vis de l'interaction électrostatique (Fig. IV-1 et 2 (c)).

- Interaction électrostatique

Pour une même configuration, l'interaction électrostatique lève la dégénérescence des états qui existe dans le problème à champ central, en caractérisant chaque état par des valeurs de L et S, les laissant dégénérés par rapport à J et M, d'où les états, dans la notation classique $^{2S+1}[L]$:

^1S	issu de la configuration :			$(2s)^0(2p)^6$
$^1P, {}^3P$	"	"	"	$(2s)^1(2p)^5$
$^1S, {}^1D, [{}^3P]$	"	"	"	$(2s)^2(2p)^4$

l'état ^3P de la configuration ($(2s)^2$ $(2p)^6$) étant inscrit en pointillé sur les figures IV-1 et 2 car une transition Auger vers cet état est interdite, dans le couplage L-S pur, par conservation de la parité. Dans le cas (b) sont donc prévues 5 transitions Auger possibles. L'énergie de ces états se calcule en fonction des éléments de matrice de l'interaction électrostatique entre deux électrons de couches (nl) et (n'l') définis en fonction de :

$$F^k(nl,n'l') = e^2 \iint_0^\infty \gamma_k R^2_{nl}(r_1) R^2_{n'l'}(r_2)\, r_1^2\, r_2^2\, dr_1\, dr_2$$

$$G^k(nl,n'l') = e^2 \iint_0^\infty \gamma_k R_{nl}(r_1) R_{n'l'}(r_1) R_{nl}(r_2) R_{n'l'}(r_2)\, r_1^2\, r_2^2\, dr_1\, dr_2$$

avec $\gamma_k = \begin{cases} r_1^k / r_1^{k+1} & (r_1 < r_2) \\ r_2^k / r_2^{k+1} & (r_2 < r_1) \end{cases}$ $\qquad l + l' + k = 2g$

$\qquad |l - l'| \leq k \leq l + l'$

$R_{nl}(r)$ et $R_{n'l'}(r)$ étant les parties radiales de la fonction d'onde d'un électron dans les états (nl) et (n'l') ; en effet l'élément de matrice de l'interaction électrostatique s'écrit pour une configuration donnée :

$$\langle A | \sum_{i=1}^{N} \frac{e^2}{r_{ij}} | A \rangle = \sum_{a>b=1}^{N} \left[\langle ab | \frac{e^2}{r_{12}} | ab \rangle - \langle ab | \frac{e^2}{r_{12}} | ba \rangle \right]$$

$$= \sum_{a>b=1}^{N} \left[J(ab) - K(ab) \right]$$

avec $J(ab) = \sum_k a^k(\ell^a m_\ell^a, \ell'^b m_{\ell'}^b) F^k(n^a \ell^a, n'^b \ell'^b)$

$$K(ab) = \delta(m_s^a, m_{s'}^b) \sum_k b^k(\ell^a m_\ell^a, \ell'^b m_{\ell'}^b) G^k(n^a \ell^a, n'^b \ell'^b)$$

ce dernier terme d'échange n'existant que pour deux électrons de même spin.

En tenant compte des énergies de liaison des électrons dans les différentes couches L :

$$E(L_1) = I(2s) - F^0(20,20) - 6F^0(21,20) + G^1(21,20)$$

$$E(2p) = I(2p) - 2F^0(21,20) + \frac{1}{3}G^1(21,20) - 5F^0(21,21) + \frac{2}{5}F^2(21,21)$$

où I (2s) et I (2p) représentent les énergies des électrons 2s et 2p respectivement dans le champ dû au noyau et aux électrons autres que ceux de la couche L, les énergies des états des différentes configurations s'expriment :

$$(2s)^0(2p)^6 : {}^1S = E(K) - 2E(L_1) - F^0(20,20)$$

$$(2s)^1(2p)^5 : {}^1P = E(K) - E(L_1) - E(2p) - F^0(21,20) - \frac{1}{3}G^1(21,20)$$

$${}^3P = E(K) - E(L_1) - E(2p) - F^0(21,20) + \frac{1}{3}G^1(21,20)$$

$$(2s)^0(2p)^4 : {}^1S = E(K) - 2E(2p) - F^0(21,21) - \frac{2}{5}F^2(21,21)$$
$$ {}^1D = E(K) - 2E(2p) - F^0(21,21) - \frac{1}{25}F^2(21,21)$$
$$ [{}^3P] = E(K) - 2E(2p) - F^0(21,21) + \frac{1}{5}F^2(21,21)$$

- Interaction spin-orbite :

L'interaction spin-orbite $H^I = \sum_i \xi(r_i)\vec{L}_i\vec{S}_i$ commute avec le moment angulaire total J, mais non avec L et S qui ne sont donc plus de bons nombres quantiques ; cependant, si l'interaction spin-orbite est petite et si l'on ne tient compte que des termes diagonaux dans la représentation SLJM, on caractérisera encore les états par S, L, et J, l'effet de cette interaction étant de lever la dégénérescence par rapport à J, l'état restant dégénéré par rapport à M. On utilise la notation classique ${}^{2S+1}[L]_J$ pour caractériser chaque état.

Ainsi les états ${}^3P$ donnent naissance à 3 états : ${}^3P_0$, ${}^3P_1$, ${}^3P_2$ dont les énergies sont données par :

$$E(SLJ) - E(SL,J-1) = J.\xi(SL)$$

l'énergie de l'état ${}^3P$, sans considération d'interaction spin-orbite, étant le centre de gravité des 3 niveaux, pondérés par (2J + 1) ; $\xi(SL)$ n'est autre que $\frac{2}{3}\left[E(L_2) - E(L_3)\right]$.

Dans le cas (c), couplage L-S pur avec interaction électrostatique et interaction spin-orbite faible, sont donc prévues 7 transitions Auger.

Cependant la matrice H^I a des composantes non diagonales dans la représentation SLJM, et ces termes sont responsables du manque de validité du couplage L-S pur, même pour des valeurs de Z faibles.

A - I - 3 - Couplage intermédiaire

A - I - 3 - a) - Dans le cadre des deux couplages extrêmes précédents : LS pour lequel l'interaction coulombienne entre les lacunes finales prédomine, et j-j pour lequel l'interaction spin-orbite est prépondérante, les résultats expérimentaux sont en médiocre accord avec les résultats théoriques déduits de ces approximations.

En réalité, il faut calculer la matrice d'énergie complète dans la représentation SLJM en tenant compte des deux effets de n'importe quel ordre de grandeur l'un par rapport à l'autre.

Dans cette représentation, l'énergie électrostatique est complètement diagonale et l'interaction spin-orbite est diagonale par rapport à J et M. Ainsi, à l'intérieur d'une même configuration, les fonctions d'ondes des différents états s'expriment à partir des fonctions d'ondes des états de même J du couplage L-S pur.
Par exemple pour la configuration $(2s)^2\ (2p)^4$:

$$\Psi_i(2) = C_i(^3P_2)\ \Psi_0(^3P_2) + C_i(^1D_2)\ \Psi_0(^1D_2)$$

$$\Psi_i(0) = C_i(^3P_0)\ \Psi_0(^3P_0) + C_i(^1S_0)\ \Psi_0(^1S_0)$$

L'interdiction des transitions Auger vers les états $(^3P_2)$ et $(^3P_0)$ de cette configuration est donc levée et dans ce cas 9 raies Auger sont possibles. (Fig. IV - 1 et 2 (d))

Les énergies s'expriment alors par :

$$KL_1L_1(^1S_0) = E(K) - 2E(L_1) - F^0(20,20)$$

$$KL_1L_2(^1P_1) = E(K) - E(L_1) - E(2p) - F^0(21,20) - \frac{1}{4}\xi_{21} - \left\{\left(\frac{1}{3}G^1(21,20) - \frac{1}{4}\xi_{21}\right)^2 + \frac{1}{2}\xi_{21}^2\right\}^{1/2}$$

$$KL_1L_2(^3P_0) = E(K) - E(L_1) - E(2p) - F^0(21,20) + \frac{1}{3}G^1(21,20) - \xi_{21}$$

$$KL_1L_3(^3P_1) = E(K) - E(L_1) - E(2p) - F^0(21,20) - \frac{1}{4}\xi_{21} + \left\{\left(\frac{1}{3}G^1(21,20) - \frac{1}{4}\xi_{21}\right)^2 + \frac{1}{2}\xi_{21}^2\right\}^{1/2}$$

$$KL_1L_3(^3P_2) = E(K) - E(L_1) - E(2p) - F^0(21,20) + \frac{1}{3}G_1(21,20) + \frac{1}{2}\xi_{21}$$

$$KL_2L_2(^1S_0) = E(K) - 2E(2p) - F^0(21,21) - \frac{1}{10}F^2(21,21) - \frac{1}{2}\xi_{21} - \left\{\left(\frac{3}{10}F^2(21,21) - \frac{1}{2}\xi_{21}\right)^2 + 2\xi_{21}^2\right\}^{1/2}$$

$$KL_3L_3(^3P_2) = E(K) - 2E(2p) - F^0(21,21) + \frac{2}{25}F^2(21,21) + \frac{1}{4}\xi_{21} + \left\{\left(\frac{3}{25}F^2(21,21) + \frac{1}{4}\xi_{21}\right)^2 + \frac{1}{2}\xi_{21}^2\right\}^{1/2}$$

$$KL_3L_3(^3P_0) = E(K) - 2E(2p) - F^0(21,21) - \frac{1}{10}F^2(21,21) - \frac{1}{2}\xi_{21} + \left\{\left(\frac{3}{10}F^2(21,21) - \frac{1}{2}\xi_{21}\right)^2 + 2\xi_{21}^2\right\}^{1/2}$$

$$KL_2L_3(^1D_2) = E(K) - 2E(2p) - F^0(21,21) + \frac{2}{25}F^2(21,21) + \frac{1}{4}\xi_{21} - \left\{\left(\frac{3}{25}F^2(21,21) + \frac{1}{4}\xi_{21}\right)^2 + \frac{1}{2}\xi_{21}^2\right\}^{1/2}$$

A - I - 3 - b) - Les deux diagrammes en énergies des figures IV - 1 et IV - 2 ont été calculés sur la base des éléments de matrice de l'interaction électrostatique qui seront décrits plus en détail dans le paragraphe 3-c : ils sont donnés pour des valeurs de Z = 40 et Z = 92 pour montrer l'importance relative des

effets d'interaction coulombienne et d'interaction spin-orbite l'un par rapport à l'autre, suivant la valeur de Z. Pour illustrer le passage d'un type de couplage à l'autre, les énergies relatives des différentes composantes du spectre Auger ont été portées en fonction de Z sur la figure IV-3. Pour des commodités de représentation, il a été porté la quantité :

$$\frac{E_{KL_iL_j} - E_{KL_1L_1}}{\overline{E_{KL_3L_3}} - E_{KL_1L_1}} \quad \text{avec} \quad \overline{E_{KL_3L_3}} = \left(\frac{E(^3P_0)+E(^3P_2)}{2}\right)$$

la variation de l'énergie absolue de KL_1L_1 et KL_3L_3 étant représentée sur un petit graphique annexe. Les énergies des 9 composantes du spectre dans le cadre du couplage intermédiaire sont celles calculées par la méthode semi-empirique de Hörnfeldt [HO (62)] . A la limite des Z élevés, on tend vers une représentation en couplage j-j pur, l'écart entre les doublets devenant très faible, tandis qu'à la limite des Z faibles, on tend vers la représentation du couplage LS pur.

La figure IV - 4 montre la variation de l'écart relatif en énergie des doublets des raies "complexes" KL_1L_2, KL_1L_3, KL_3L_3 en fonction de Z ; on voit aisément sur cette figure la difficulté d'observer de tels doublets pour les atomes de Z élevé et c'est pourquoi, à part l'étude du spectre Auger KLL de $^{239}_{94}Pu$ par Ewan et coll. [EW (59)] , qui ont mis en évidence pour la première fois un élargissement de la raie KL_1L_3 indiquant un dédoublement conforme au couplage intermédiaire, ainsi qu'un dédoublement de la raie KL_3L_3 par Toburen et al. [TO (67)], à part ces travaux, toutes les expériences ayant mis en évidence des dédoublements de raies concernent la région de $Z < 71$. C'est ce qui m'a amenée à choisir un atome de Z élevé, l'uranium($Z = 92$), et à étudier avec une très haute résolution le spectre Auger KLL

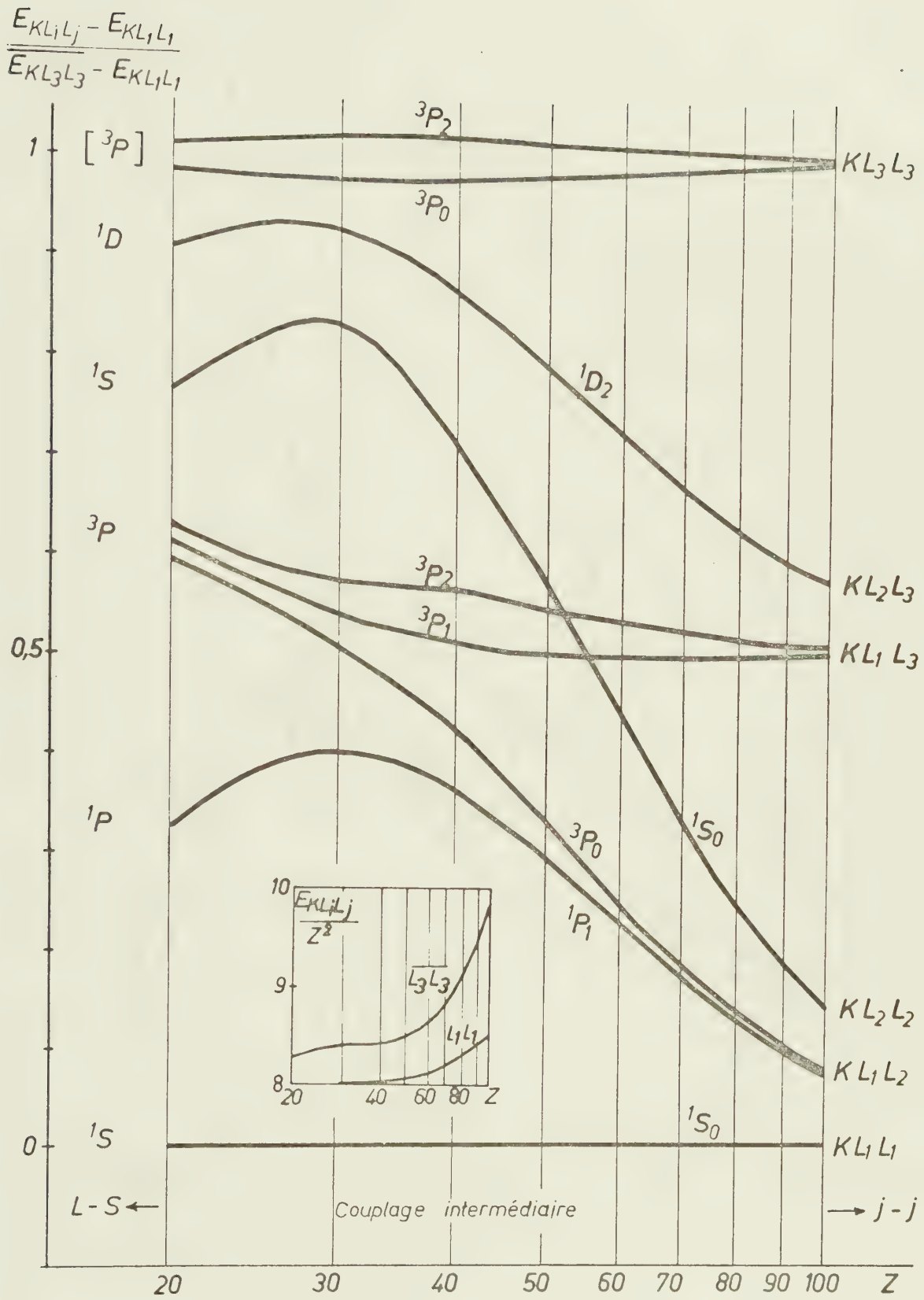

$\frac{E_{KL_iL_j} - E_{KL_1L_1}}{E_{KL_3L_3} - E_{KL_1L_1}}$
1
0,5
0
[^3P]
^1D
^1S
^3P
^1P
^1S
$^3P_2$
$^3P_0$
$^1D_2$
$^3P_2$
$^3P_1$
$^3P_0$
$^1P_1$
$^1S_0$
$^1S_0$
KL_3L_3
KL_2L_3
KL_1L_3
KL_2L_2
KL_1L_2
KL_1L_1
10
9
8
$\frac{E_{KL_iL_j}}{Z^2}$
L_3L_3
L_1L_1
20
40
60
80
Z
L - S ←
Couplage intermédiaire
→ j - j
20
30
40
50
60
70
80
90
100
Z

Fig. IV-3

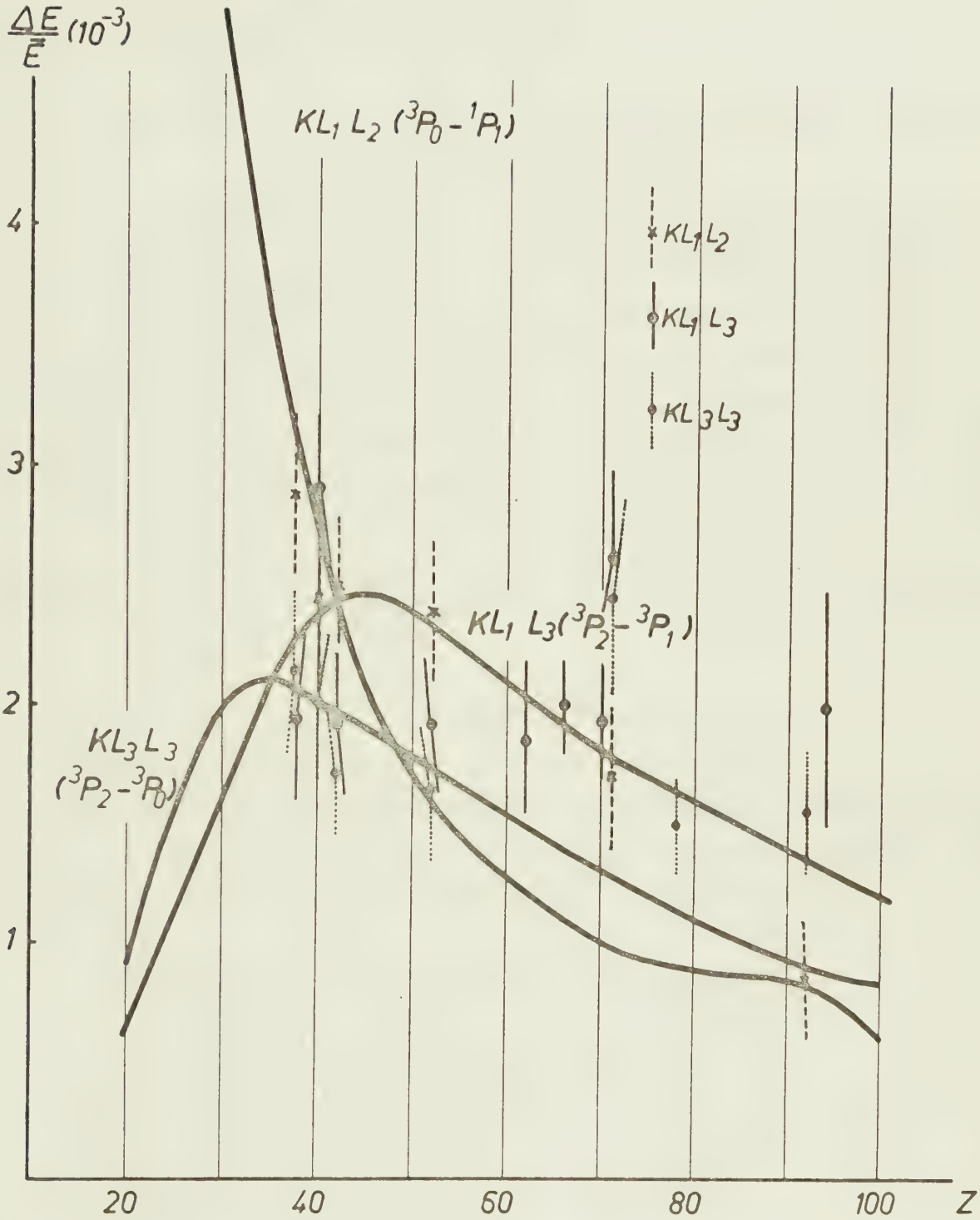

$\frac{\Delta E}{E}$ (10^{-3})
$KL_1 L_2$ $(^3P_0 - {}^1P_1)$
$KL_1 L_2$
$KL_1 L_3$
$KL_3 L_3$
$KL_1 L_3 (^3P_2 - {}^3P_1)$
$KL_3 L_3$
$(^3P_2 - {}^3P_0)$
4
3
2
1
20
40
60
80
100
Z

Fig. IV – 4

émis après désintégration β du ^{233}Pa en ^{233}U, afin d'examiner la valadité des calculs théoriques dans cette région où les effets relativistes doivent être pris en considération.

A - I - 3 - c) - Calcul des éléments de matrice de l'interaction électrostatique.

Dans le calcul des éléments de matrice de l'interaction électrostatique, Asaad et Burhop [AS (58)] ont utilisé des fonctions d'onde hydrogénoïdes avec écran, les constantes d'écran étant dérivées des règles de Släter [SL (30)] , après avoir vérifié l'accord raisonnable de ces constantes pour le mercure, pour lequel ils ont effectué des calculs avec des fonctions d'onde de champ self-consistant. Cependant, l'accord avec les résultats expérimentaux étant médiocre (les valeurs calculées étaient trop grandes de 25 %), ils ont introduit un terme de correction relativiste en $(1 - \alpha Z^2)$, si bien que les éléments de matrice F et G sont de la forme :

$A (Z - Z_S) (1 - \alpha Z^2)$ où Z_S est la constante d'écran.

C'est l'ensemble des types de calculs cités ci-dessus, et la confrontation avec les résultats expérimentaux de Mladjenovic et Slätis [ML (54)] pour Z = 83 , qui permettent de déduire les éléments de matrice de l'interaction électrostatique :

$$F^0_{eV}(20,20) = 4,08\,(Z-3,8)(1-1,76.10^{-5}Z^2)$$
$$F^0_{eV}(21,20) = 4,41\,(Z-4,0)(1-3,25.10^{-5}Z^2)$$
$$G^1_{eV}(21,20) = 2,39\,(Z-2,6)$$
$$F^0_{eV}(21,21) = 4,94\,(Z-4,5)(1-2,5.10^{-5}Z^2)$$
$$F^2_{eV}(21,21) = 2,39\,(Z-5,1)$$

Cependant l'accord avec l'expérience n'est pas satisfaisant, le calcul donnant des énergies trop petites pour les valeurs de Z faibles et des énergies trop grandes pour les valeurs de Z élevées, cependant que les différences d'énergies entre composantes d'une même configuration sont correctes. Ces désaccords sont dûs à l'évaluation des termes d'énergie d'interaction coulombienne qui n'affectent pas les écarts en énergie à l'intérieur d'une même configuration.

Hörnfeldt [HÖ(62)] a procédé par une méthode semi-empirique en utilisant tous les résultats expérimentaux connus jusqu'en 1962, et a trouvé que le facteur $(1 - \alpha Z^2)$ de correction relativiste n'est pas satisfaisant et doit être remplacé par un facteur $(1 + \beta Z^3)$ pour rendre compte des résultats expérimentaux. Par une méthode des moindres carrés il a pu ainsi calculer les paramètres A et β en utilisant les coefficients d'écran de Asaad et Burhop, ce qui donne pour les éléments de matrice les nouvelles valeurs :

$$F^0_{eV}(20,20) = 2,10\,(Z-3,8)(1+1,40 \,.\, 10^{-6} Z^3)$$
$$F^0_{eV}(21,20) = 2,30\,(Z-4,0)(1+1,10 \,.\, 10^{-6} Z^3)$$
$$G^1_{eV}(21,20) = 2,66\,(Z-2,6)$$
$$F^0_{eV}(21,21) = 2,70\,(Z-4,5)(1+0,80 \,.\, 10^{-6} Z^3)$$
$$F^2_{eV}(21,21) = 2,75\,(Z-5,1)$$

Ce sont ces valeurs de l'interaction électrostatique qui ont été utilisées dans le calcul des énergies des raies Auger (Fig. IV-1 et 2) dans les différentes hypothèses de couplage.

Les mesures, qui seront données dans le paragraphe du spectre Auger KLL de l'uranium, permettront de calculer ces interactions d'après l'expérience et seront comparées ultérieurement aux valeurs de Asaad et Burhop ainsi qu'à celles de Hörnfeldt.

A - II - Intensités

Dans le couplage intermédiaire les fonctions propres du système s'expriment en fonction des états propres du couplage L - S :

$$\Psi_i(J) = \sum_i C_i({}^nL_J)\,\Psi_0({}^nL_J)$$

où les coefficients C_i sont les coefficients de mélange et où l'indice i représente une solution particulière de l'équation séculaire pour une valeur de J donnée, et pour la configuration (nl) (n'l') concernée. Dans ces conditions les probabilités de transition Auger s'expriment en fonction des amplitudes :

$$\left\{(nl),(n'l'),\gamma,k\right\} = \frac{4\pi^2 e^2}{h^2}\iint_{r_1,r_2=0}^{\infty} \gamma_\nu R_{10}(r_1)R_{nl}(r_1)R_{n'l'}(r_2)R_\infty^k(r_2)r_1^2\,r_2^2\,dr_1\,dr_2$$

où $R_{10}(r), R_{nl}(r), R_{n'l'}(r)$ et $R_\infty^k(r)$

sont les parties radiales des fonctions d'onde d'un électron respectivement dans les états liés (1s), (nl), (n'l'), et dans un état d'énergie positive de moment angulaire k (électron éjecté), ces électrons se mouvant dans le champ central dû au noyau, avec effet d'écran approprié des autres électrons (la normalisation de l'état représentant l'électron éjecté est telle qu'il y ait un électron par unité de temps).

Ainsi dans le couplage L-S pur les probabilités de transition Auger s'expriment pour les différents états finaux par :

$(2s)^0(2p)^6$ $\quad K\{(2s)^2\ {}^1S_0\} = |\{(2s)^2, 0, 0\}|^2$

$(2s)^1(2p)^5$ $\quad K\{(2s)(2p)\ {}^1P_1\} = \frac{3}{2}|\{(2s)(2p), 0, 1\} + \frac{1}{3}\{(2p)(2s), 1, 1\}|^2$

$K\{(2s)(2p)\ {}^3P_{0,1,2}\} = (J+\frac{1}{2})|\{(2s)(2p), 0, 1\} - \frac{1}{3}\{(2p)(2s), 1, 1\}|^2$

$(2s)^2(2p)^4$ $\quad K\{(2p)^2\ {}^1S_0\} = \frac{1}{3}|\{(2p)^2, 1, 0\}|^2$

$K\{(2p)^2\ {}^1D_2\} = \frac{2}{3}|\{(2p)^2, 1, 2\}|^2$

(la probabilité de transition pour la configuration finale $(2s)^2\ (2p)^4$ vers les états ${}^3P_{0,\ 1,\ 2}$ étant nulle dans le couplage L-S pur). Dans le cadre du couplage intermédiaire les probabilités de transition sont alors de la forme :

$(2s)^0(2p)^6$ $\quad L_1L_1\ ({}^1S_0) = K\{(2s)^2\ {}^1S_0\}$

$(2s)^1(2p)^5$ $\quad L_1L_2\ ({}^3P_0) = K\{(2s)(2p)\ {}^3P_0\}$

$L_1L_2\ ({}^1P_1) = K\{(2s)(2p)\ {}^1P_1\} - \frac{\alpha^2}{1+\alpha^2}[K\{(2s)(2p)\ {}^1P_1\} - K\{(2s)(2p)\ {}^3P_1\}]$

$L_1L_3\ ({}^3P_1) = K\{(2s)(2p)\ {}^3P_1\} + \frac{\alpha^2}{1+\alpha^2}[K\{(2s)(2p)\ {}^1P_1\} - K\{(2s)(2p)\ {}^3P_1\}]$

$L_1L_3\ ({}^3P_2) = K\{(2s)(2p)\ {}^3P_2\}$

$(2s)^2(2p)^4$ $\quad L_2L_2\ ({}^1S_0) = \frac{1}{1+\alpha_1^2}\ K\{(2p)^2\ {}^1S_0\}$

$L_2L_3\ ({}^1D_2) = \frac{1}{1+\alpha_2^2}\ K\{(2p)^2\ {}^1D_2\}$

$L_3L_3\ ({}^3P_0) = \frac{\alpha_1^2}{1+\alpha_1^2}\ K\{(2p)^2\ {}^1S_0\}$

$L_3L_3\ ({}^3P_2) = \frac{\alpha_2^2}{1+\alpha_2^2}\ K\{(2p)^2\ {}^1D_2\}$

où les coefficients α_i ne sont autres que les paramètres de mélange :

$$\alpha = \xi_{21} \cdot 2^{-1/2} \left[\frac{1}{3} G^1(21,21) - \frac{1}{4}\xi_{21} + \sqrt{\left(\frac{1}{3}G^1(21,21) - \frac{1}{4}\xi_{21}\right)^2 + \frac{1}{2}\xi_{21}^2} \right]^{-1}$$

$$\alpha_1 = \xi_{21} \cdot 2^{1/2} \left[\frac{3}{10} F^2(21,21) - \frac{1}{2}\xi_{21} + \sqrt{\left(\frac{3}{10}F^2(21,21) - \frac{1}{2}\xi_{21}\right)^2 + 2\xi_{21}^2} \right]^{-1}$$

$$\alpha_2 = \xi_{21} \cdot 2^{-1/2} \left[\frac{3}{25} F^2(21,21) + \frac{1}{4}\xi_{21} + \sqrt{\left(\frac{3}{25}F^2(21,21) + \frac{1}{4}\xi_{21}\right)^2 + \frac{1}{2}\xi_{21}^2} \right]^{-1}$$

dont la variation en fonction de Z est donnée sur la figure IV - 5

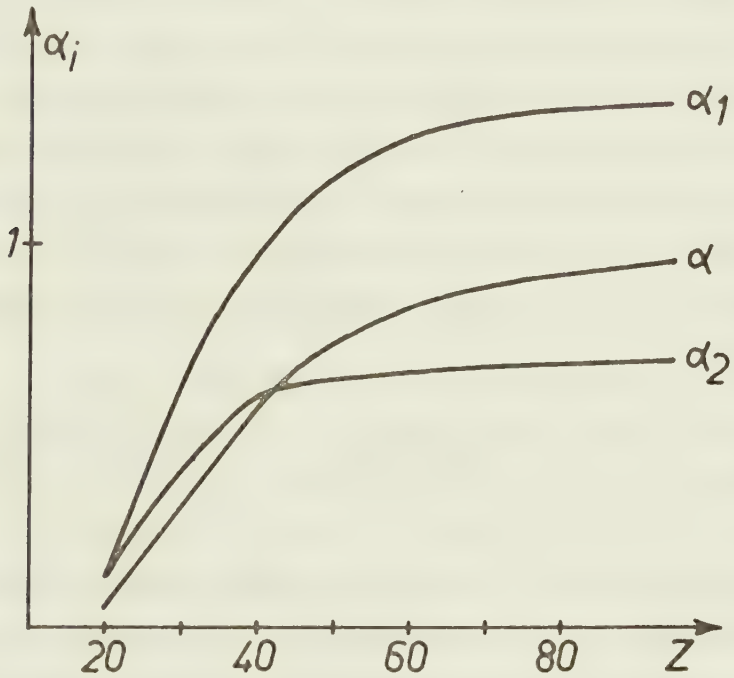


Fig. IV - 5

Différents calculs des amplitudes de transition Auger ont été faits, en particulier par Wentzel [WE (27)] , par Pincherle [PI (35)] , Burhop [BU (35)] , Ramberg et Richtmyer [RA (37)] , Rubenstein et Snyder [RU (55)] , Callan [CA (61)] , Archard [AR (64)] : Pincherle utilise des fonctions d'onde hydrogénoïdes sans effet d'écran, tandis que Burhop utilise des fonctions d'onde hydrogénoïdes avec effet d'écran dérivé des règles de Släter [SL (30)] , Ramberg et Richtmyer utilisent des fonctions d'onde pour un champ de Fermi - Thomas; Rubenstein et Snyder, des fonctions d'onde de champ self - consistant ;

Callan, des fonctions d'ondes hydrogénoïdes, les constantes d'écran étant dérivées des coefficients d'écran limites donnés par Froese [FR (58), (59)] basés sur des fonctions de champ self-consistant; enfin Archard utilise des fonctions de Hartree-Fock pour les états liés et des formes de Yost-Breit pour les états du continu ($Z < 18$) .

Dans le cadre du couplage intermédiaire, Asaad et Burhop [AS (58)] ont commencé par calculer les intensités relatives des différentes composantes du spectre KLL en utilisant les amplitudes calculées par Burhop. Puis Asaad a repris ces calculs [AS (63)] en utilisant aussi les amplitudes de Rubenstein et Snyder, et celles de Callan. Dans cette même étude Asaad donne aussi les intensités dans le cadre du couplage j-j en faisant tendre les coefficients de mélange vers leur valeur limite ($\alpha^2 = \alpha_1^2 = 2$ et $\alpha_2^2 = \frac{1}{2}$) qui est atteinte, pour le couplage j-j, quand les rapports :

$G^1(21,21)/\xi_{21}$ et $F^2(21,21)/\xi_{21}$ tendent vers zéro

Puis en 1965, [AS (65)] , pour tenter d'expliquer le désaccord qui subsistait entre théorie et expérience pour la raie KL_1L_1, Asaad a tenu compte d'une interaction entre les deux configurations $[(2s)^0(2p)^6]$ et $[(2s)^2(2p)^4]$ pour l'état $J = 0$ et a calculé les intensités relatives à l'aide des amplitudes d'Archard, de Rubenstein et Snyder, de Burhop et de Callan suivant les domaines de variation de Z.

Enfin dans l'hypothèse du couplage j-j pur, à part le calcul non relativiste de Burhop [BU (54)] et celui, relativiste, de Asaad [AS (59)] pour l'atome de mercure, Listengarten [LI (62)] a donné les intensités relatives des six raies du spectre KLL, en tenant compte des effets relativistes, pour trois atomes : Z = 65, 81, 92. Et tout récemment Chattarji et Talukdar [CH (68)] ont obtenu les probabilités de transition

KL_1L_1, pour des valeurs de Z comprises entre 72 et 80, dans un calcul relativiste utilisant les solutions de l'Hamiltonien de Biedenharn [BI (64)] . Dans leurs calculs les coefficients d'écran pour les différentes couches sont établis suivant la méthode de Froese [FR (58)], [FR (59)], et d'autre part ils ont négligé le terme de retard $\left[\exp\left(2\pi\nu_{KL}\,|\vec{r}_1-\vec{r}_2|\,\frac{1}{c}\right)\right]$ dans l'expression de la probabilité de transition Auger donnée par MØLLER [BU (52)] :

$$P = \left|\frac{2\pi}{\hbar}\iint\frac{e}{|\vec{r}_1-\vec{r}_2|}\left[\exp\left(2\pi\nu_{KL}\,|\vec{r}_1-\vec{r}_2|\,\frac{1}{c}\right)\right]\left(\rho_1\rho_2-\vec{j}_1\vec{j}_2\right)d\tau_1\,d\tau_2\right|^2$$

où ρ_1 et $\vec{j}_1$ sont les parties dépendantes du temps de la densité de charge et du vecteur courant correspondant à la transition $L \longrightarrow K$, et ρ_2, $\vec{j}_2$ les mêmes quantités correspondant à la transition $L \longrightarrow \infty$, et où ν_{KL} est la fréquence du photon X qui serait émis dans la transition radiative $L \longrightarrow K$.

Les résultats de ces différents calculs sont donnés sur les Figures IV-6 - 7 - 8 (pour des commodités de représentation les intensités portées en ordonnée sont exprimées en % de la transition totale) : on voit qu'ils diffèrent considérablement les uns des autres. En particulier, la comparaison des figures IV - 6 - a et IV - 7 - a, montre que les intensités dans le couplage intermédiaire commencent à différer de celles obtenues dans le couplage L-S pur à partir de $Z \sim 20$. D'autre part, on peut comparer les intensités relativistes (j-j pur) de Listengarten (Fig IV - 8 - b) avec celles obtenues par Asaad dans un calcul non relativiste (Fig IV - 8 - a), cette importance des effets relativistes pour des valeurs de Z élevées étant aussi illustrée sur la Figure IV - 9 qui donne, pour Z = 80, les intensités relatives dans toutes les hypothèses de couplage, calculs relativistes ou non relativistes, comparées aux valeurs expérimentales.

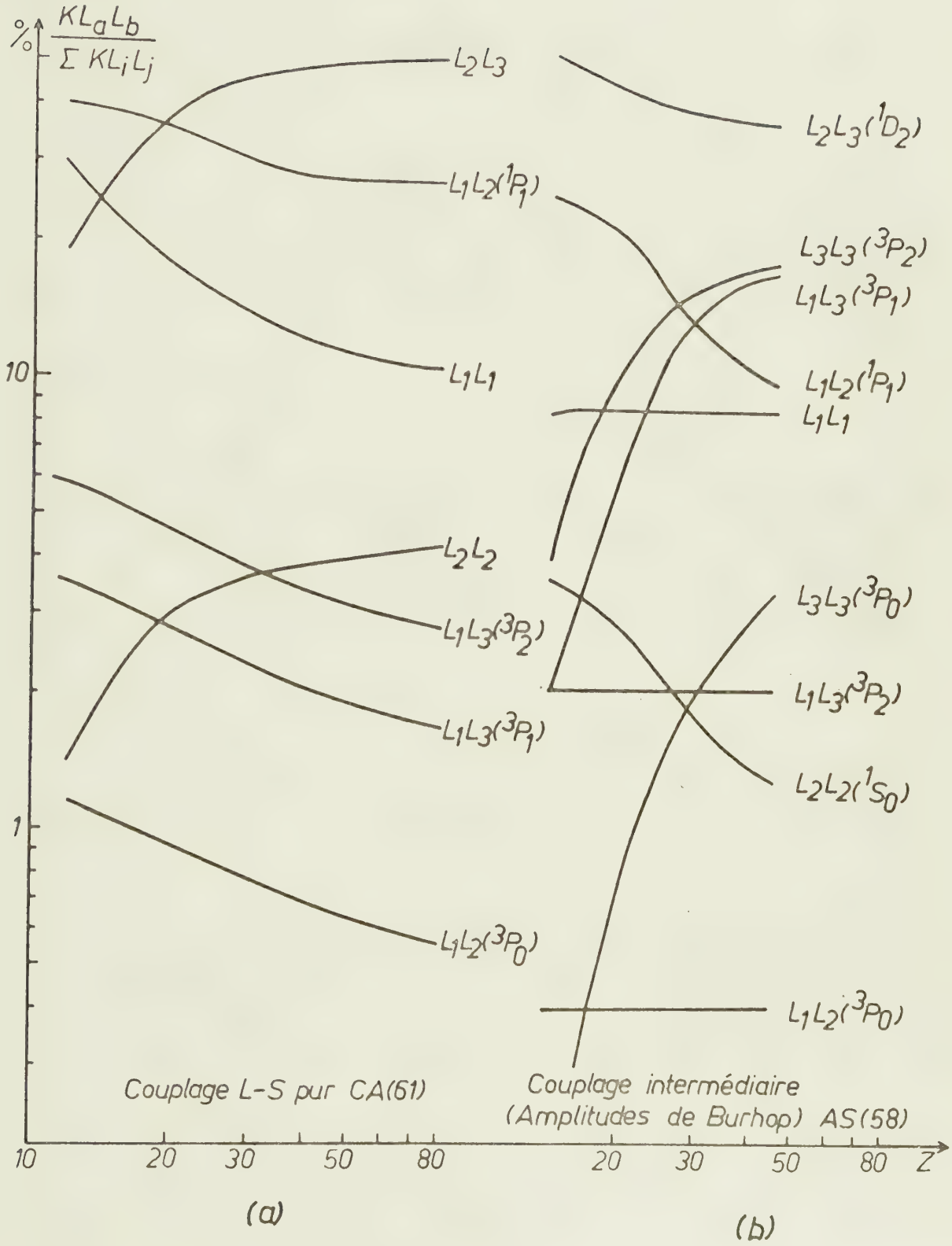

%
$\frac{KL_aL_b}{\Sigma KL_iL_j}$
10
1
L_2L_3
$L_1L_2(^1P_1)$
L_1L_1
L_2L_2
$L_1L_3(^3P_2)$
$L_1L_3(^3P_1)$
$L_1L_2(^3P_0)$
$L_2L_3(^1D_2)$
$L_3L_3(^3P_2)$
$L_1L_3(^3P_1)$
$L_1L_2(^1P_1)$
L_1L_1
$L_3L_3(^3P_0)$
$L_1L_3(^3P_2)$
$L_2L_2(^1S_0)$
$L_1L_2(^3P_0)$
Couplage L-S pur CA(61)
Couplage intermédiaire
(Amplitudes de Burhop) AS(58)
10
20
30
50
80
20
30
50
80
Z
(a)
(b)

Fig. IV-6

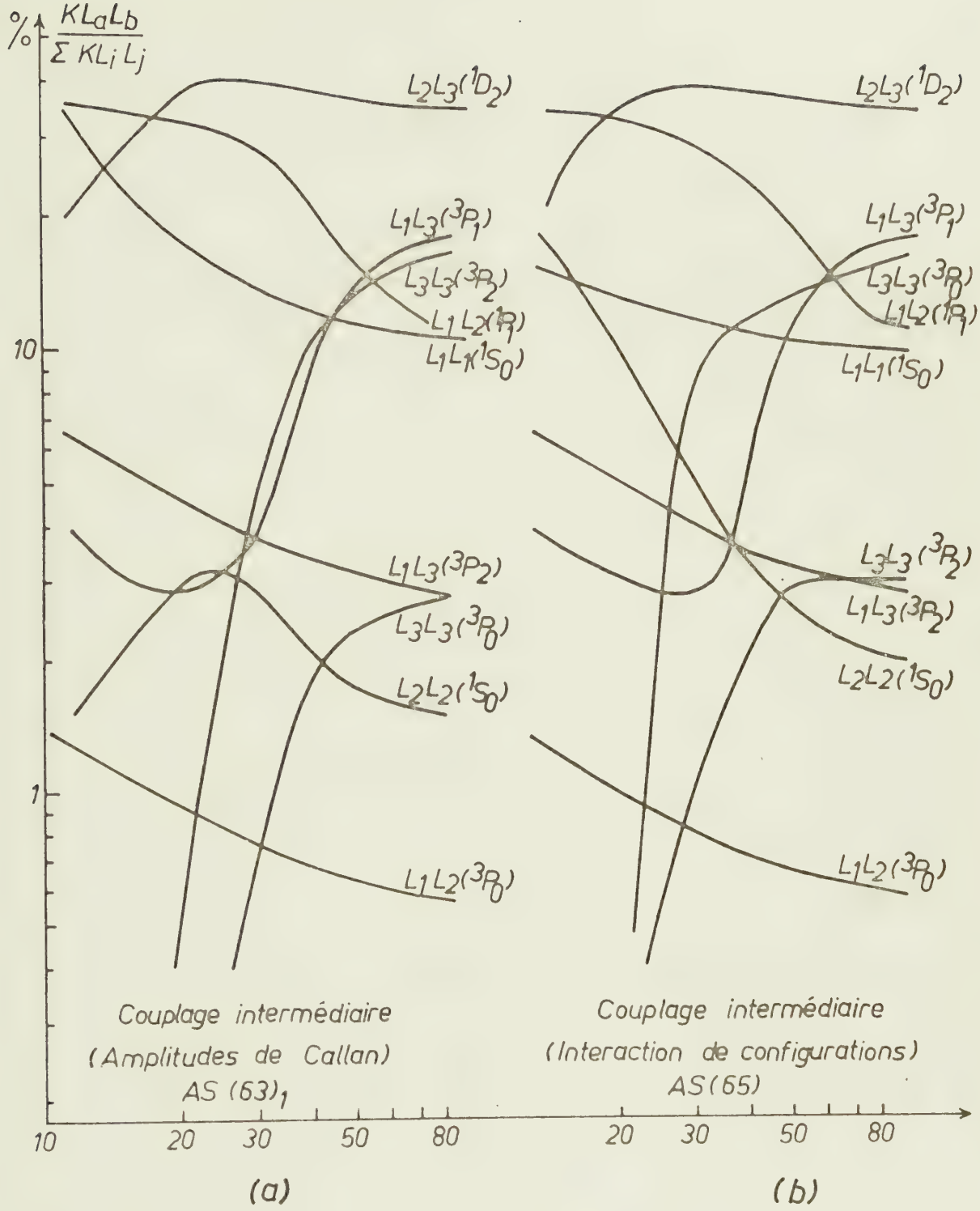

%
$\frac{KL_aL_b}{\Sigma KL_iL_j}$
10
1
$L_2L_3(^1D_2)$
$L_1L_3(^3P_1)$
$L_3L_3(^3P_2)$
$L_1L_2(^1P_1)$
$L_1L_1(^1S_0)$
$L_1L_3(^3P_2)$
$L_3L_3(^3P_0)$
$L_2L_2(^1S_0)$
$L_1L_2(^3P_0)$
$L_2L_3(^1D_2)$
$L_1L_3(^3P_1)$
$L_3L_3(^3P_0)$
$L_1L_2(^1P_1)$
$L_1L_1(^1S_0)$
$L_3L_3(^3P_2)$
$L_1L_3(^3P_2)$
$L_2L_2(^1S_0)$
$L_1L_2(^3P_0)$
Couplage intermédiaire
(Amplitudes de Callan)
AS (63)1
Couplage intermédiaire
(Interaction de configurations)
AS(65)
10
20
30
50
80
20
30
50
80
(a)
(b)

Fig. IV - 7

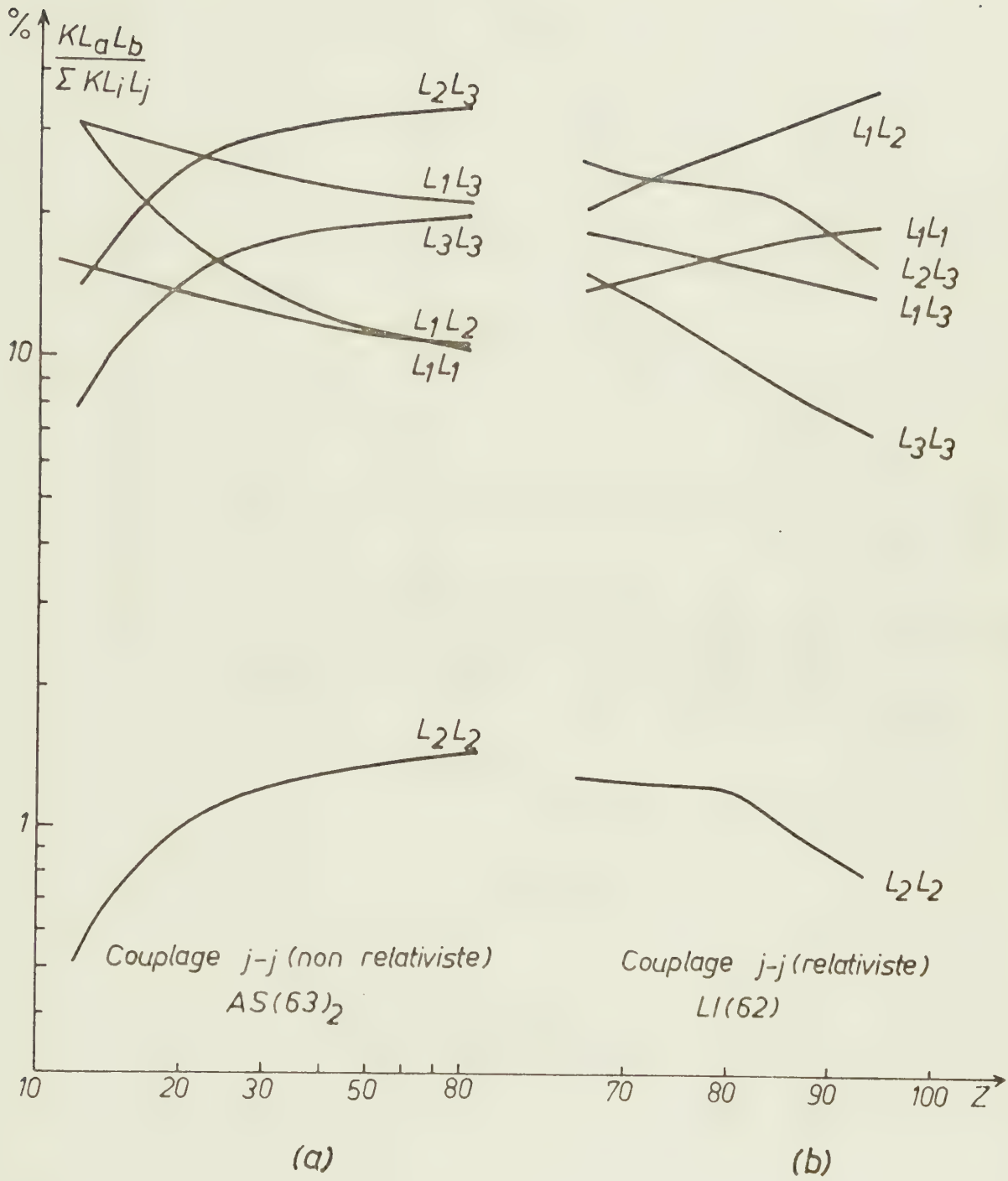

%
$\frac{KL_aL_b}{\Sigma KL_iL_j}$
L_2L_3
L_1L_3
L_3L_3
L_1L_2
L_1L_1
10
L_2L_2
1
Couplage j-j (non relativiste)
$AS(63)_2$
L_1L_2
L_1L_1
L_2L_3
L_1L_3
L_3L_3
L_2L_2
Couplage j-j (relativiste)
LI(62)
10
20
30
50
80
70
80
90
100
Z
(a)
(b)

Fig. IV-8

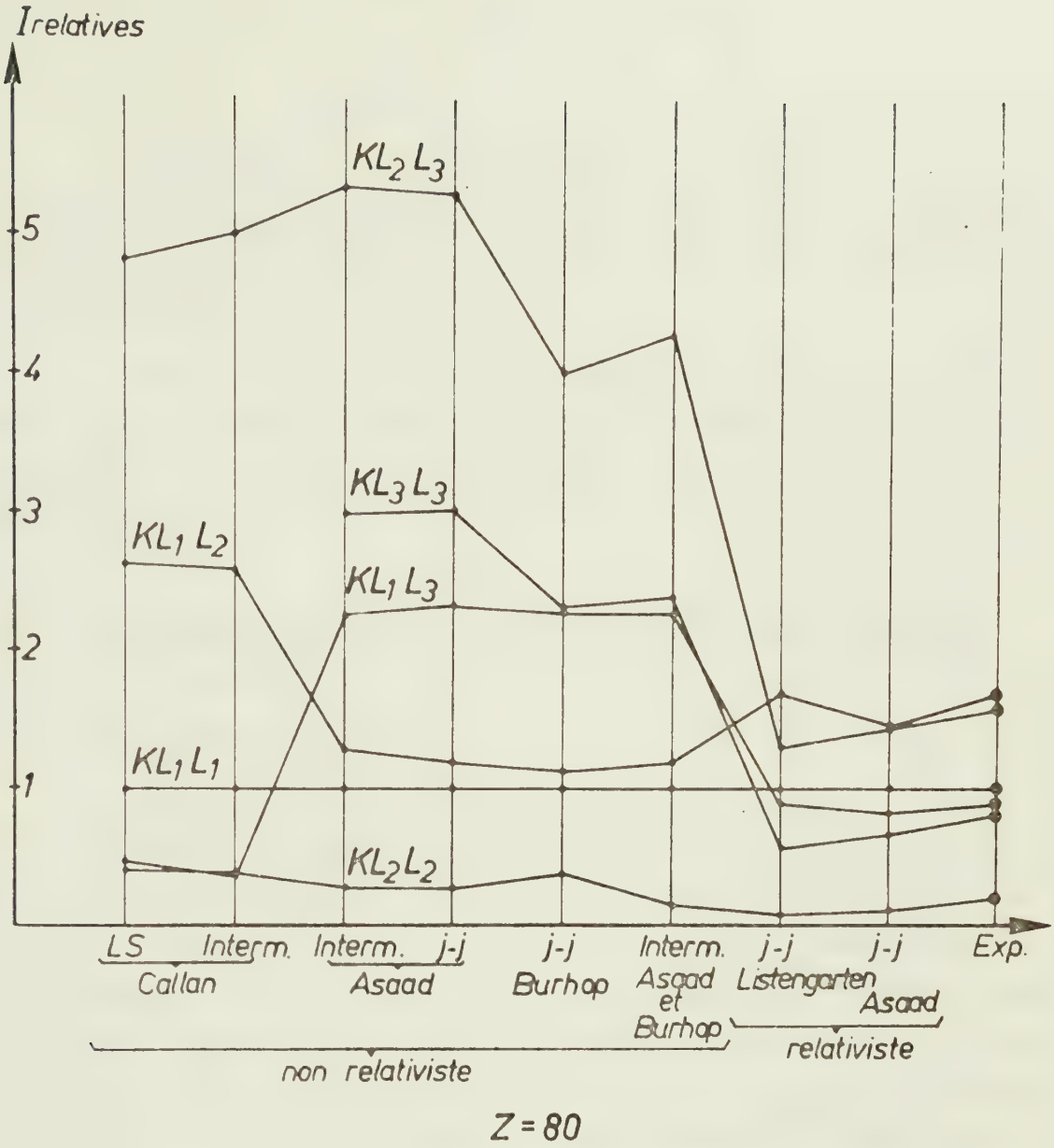


Fig. IV- 9

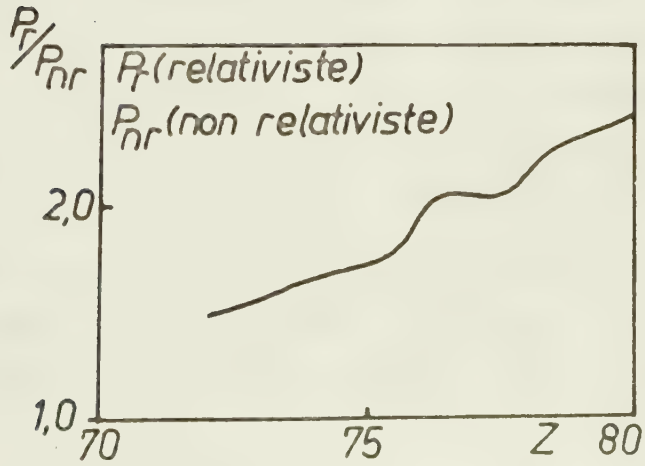


Fig. IV - 10

Les calculs relativistes et non relativistes de Chattarji et Talukdar permettent aussi d'obtenir un facteur de correction dans la région de Z compris entre 70 et 80 comme le montre la figure IV - 10.

Nous reviendrons plus loin, après l'analyse de nos résultats expérimentaux pour un atome de Z élevé (Z = 92), sur la comparaison en fonction de Z de ces différents calculs avec l'expérience.

A - III - Spectre Auger KLL émis lors de la désintégration $^{233}Pa \rightarrow {}^{233}U$

Résultats expérimentaux

C'est au cours d'une étude du schéma des niveaux de ^{233}U alimentés par la désintégration β de ^{233}Pa qu'il nous est apparu qu'il s'agissait là d'un cas très favorable pour une étude du spectre Auger KLL. Il faut en effet que soient réunies plusieurs conditions : d'une part ces raies, généralement peu intenses, ne doivent pas être masquées par des raies nucléaires, mais, d'autre part, afin de disposer d'un profil valable pour l'analyse des raies Auger, il faut disposer, à proximité, de raies nucléaires de faible largeur naturelle. Les activités spécifiques des sources doivent être élevées afin de pouvoir réaliser une optique sévère, et enfin, les caractéristiques chimiques doivent permettre de préparer des sources de haute pureté. Ces deux dernières conditions sont évidemment nécessaires à l'obtention de l'indispensable résolution élevée qui seule permet d'analyser les doublets des raies complexes. [BR (68)].

La transition $^{233}Pa \xrightarrow{\beta} {}^{233}U$ répond presque entièrement à ces exigences : le schéma de niveaux de ^{233}U présente un vide entre 92 et 313 keV qui fait qu'il n'y a pas de transitions

donnant des raies de conversion K dans la région du spectre Auger. Seules sont présentes dans cette région des raies de conversion M, N, O et P dont surtout les raies N et P sont utiles comme profils pour l'analyse. Ces raies ne sont pas superposées à des raies Auger, sauf pour la raie KL_3L_3 qui offre quelques difficultés de par la proximité de la raie M_1 du rayonnement de 75,28 keV.

Par ailleurs, de formation commode, et facile à purifier par extraction par solvant suivie de distillation de l'oxyde, le ^{233}Pa permet d'obtenir des sources d'activité spécifique très élevée, sans matières étrangères, et avec une période de 27 jours bien adaptée à une série de poses de durées décroissantes.

Au spectrographe à focalisation semi-circulaire les premiers essais ont été effectués avec des sources sur tranches polies d'aluminium puis de chrysocale. La résolution atteinte dans ces cas était de l'ordre de $\Delta B\rho/B\rho = 2,5.\ 10^{-4}$. Ceci n'était pas entièrement suffisant pour effectuer l'analyse des doublets de façon satisfaisante, ces métaux se détériorant assez rapidement sous l'effet du rayonnement. Nous avons utilisé ensuite des tranches en alliage or-nickel, dur et inaltérable. La valeur élevée de Z provoquait dans ce cas une queue de raie trop importante par rétrodiffusion des électrons, malgré une largeur à mi-hauteur très faible. Les meilleurs résultats ont été finalement obtenus avec des sources de l'ordre de 100 μCi, de dimensions 5 x 0,04 mm avec support en beryllium, pour une fente de définition de 0,12 mm et un rayon de courbure utile de 80 à 200 mm. La résolution de $1,2.\ 10^{-4}$ a été atteinte avec une queue de raie spécialement faible (fig. II-3a et II-3b).

Les densitogrammes des figures IV-11 et 12 ont été obtenus par sommation d'une série de passages de 4 mm de hauteur, afin d'utiliser au mieux l'information contenue dans la hauteur

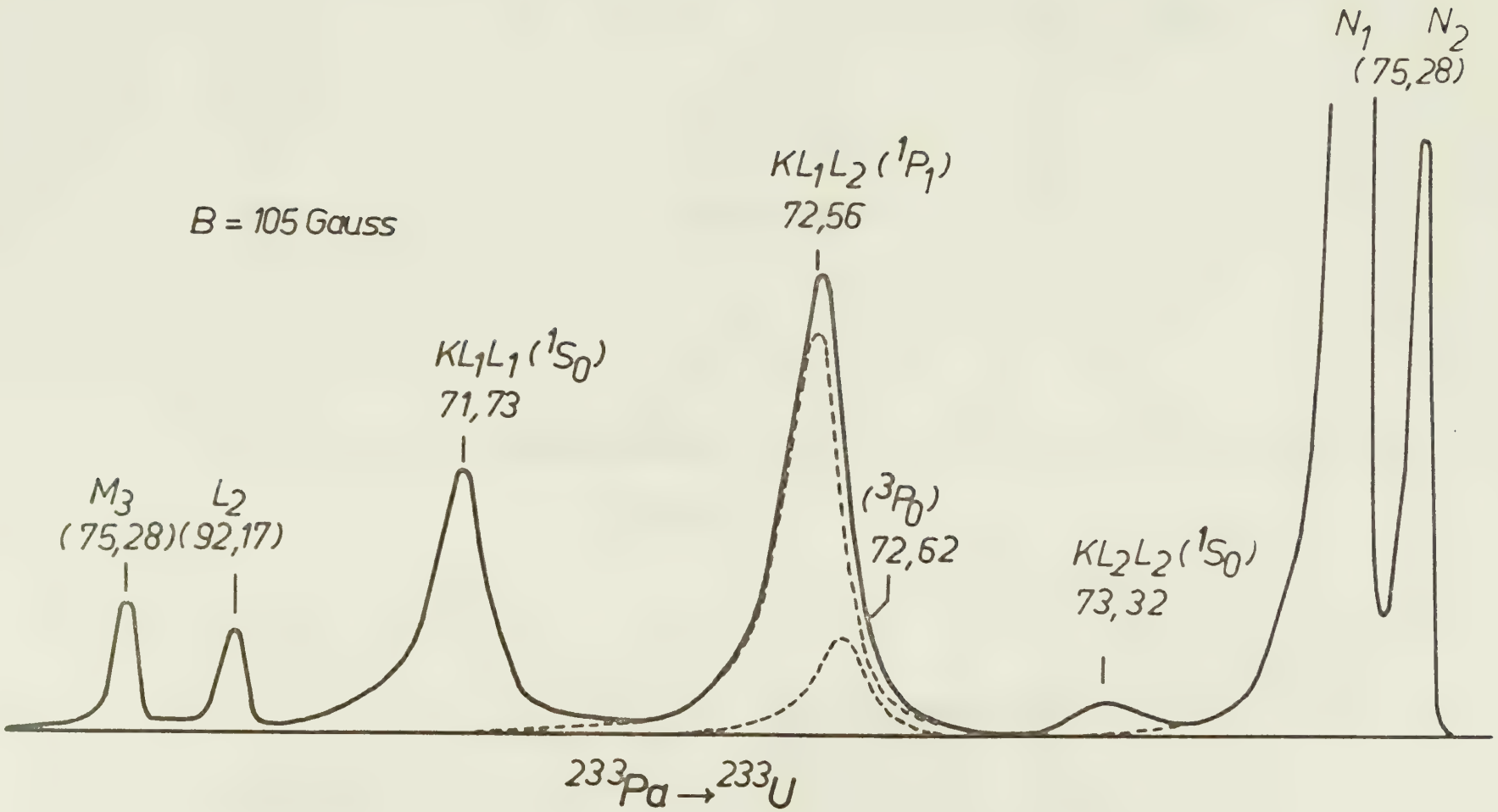
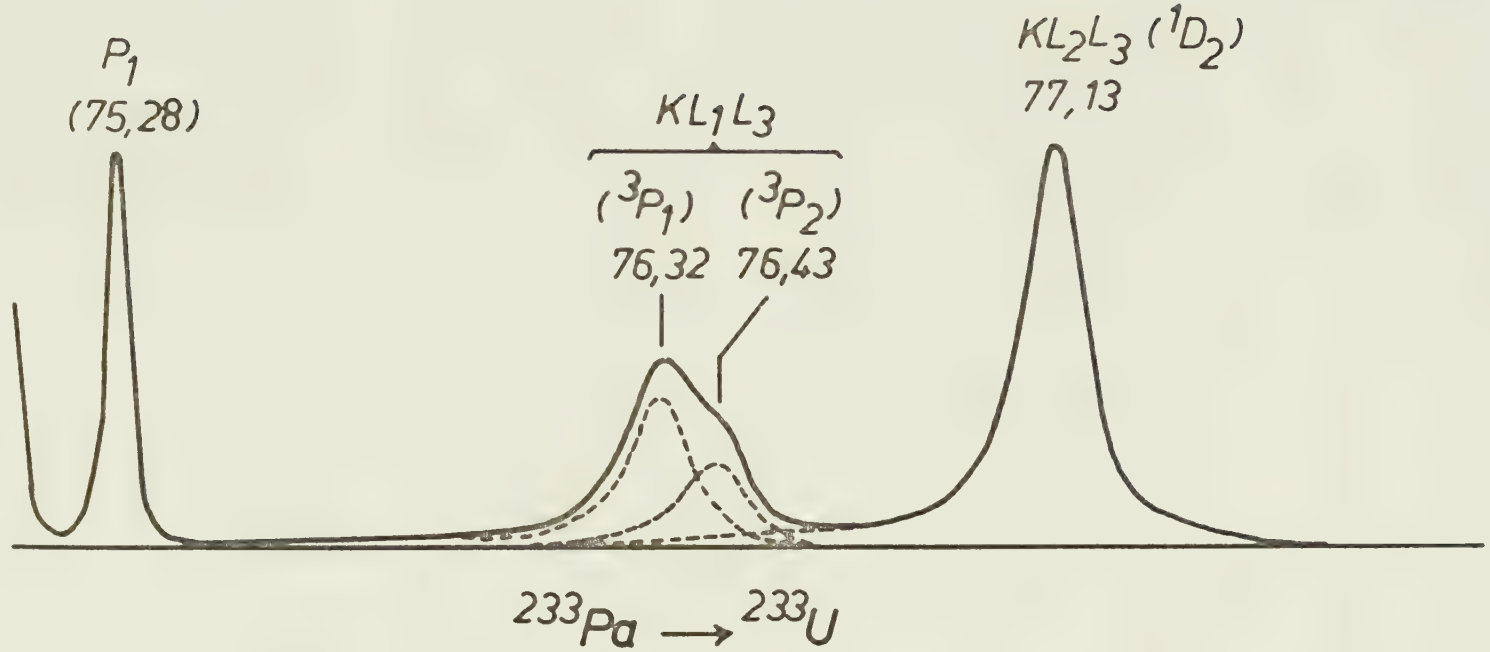

B = 105 Gauss
M_3
(75,28)
L_2
(92,17)
KL_1L_1 ($^1S_0$)
71,73
KL_1L_2 ($^1P_1$)
72,56
($^3P_0$)
72,62
KL_2L_2 ($^1S_0$)
73,32
N_1 N_2
(75,28)
$^{233}Pa \rightarrow {}^{233}U$

Fig. IV - 11

B = 105 Gauss.



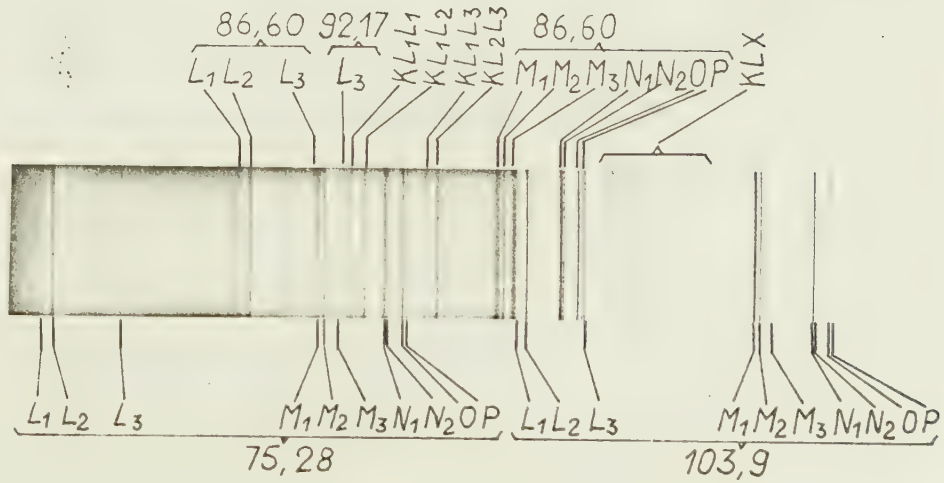


Fig. IV - 12

utile de 20 mm de l'émulsion photographique. Afin de tenir compte de la courbure de la raie, pour chaque passage la fente du densitomètre était réglée en angle sur la raie P_1 du rayonnement de 75,28 keV qui se trouve intercalée entre les raies Auger.

Les résultats expérimentaux sont reportés dans le tableau IV - a :

a) Energies : les énergies des différentes composantes du spectre sont basées sur celles des rayonnements de 75,28 , 86,59 et 103,86 keV déterminées par spectrographie cristalline par Albridge et coll. AL (61) , ces énergies étant définies par eux à $\pm$ 0,01 keV (erreur inclue dans l'erreur donnée dans le tableau). Dans le tableau IV - a, les deux séries de valeurs expérimentales d'énergies et d'intensités correspondent à deux expériences : l'une avec source sur tranche de chrysocale et diepersion plus grande (B $\sim$ 50 Gauss), la deuxième avec source sur beryllium et champ magnétique plus élevé (B $\sim$ 100 Gauss).

Les énergies absolues expérimentales des raies KL_1L_2, KL_2L_2, KL_2L_3 sont en bon accord avec les valeurs calculées semi-empiriquement par Hörnfeldt et diffèrent de celles de Asaad et Burhop de 50 à 80 eV, tandis que les raies KL_1L_1 et KL_1L_3 ont une énergie supérieure à celles de Hörnfeldt de 20 à 50 eV et inférieure à celles de Asaad et Burhop de 30 à 60 eV.

Si l'on considère les écarts en énergie par rapport à la raie KL_2L_3 (Tableau IV - a), ceux-ci sont en bon accord avec les valeurs de Hörnfeldt mais diffèrent de celles de Asaad et Burhop de 90 à 140 eV. Les différences d'énergies par rapport à KL_1L_1, des raies Auger ont aussi été portées sur la figure IV - 2 qui les compare aux écarts d'énergies calculés dans les différents types de couplage.

	L_1L_1	L_1L_2		L_2L_2	L_1L_3		L_2L_3
	$^1S_0$	$^1P_1$	$^3P_0$	$^1S_0$	$^3P_1$	$^3P_2$	$^1D_2$
E exp.(keV)(1)	71,74±0,03	72,55±0,03	72,61±0,03	73,33±0,04	76,30±0,03	76,42±0,03	77,12±0,02
E exp.(keV)(2)	7[illegible],75±0,02	72,57±0,02	72,63±0,02	73,31±0,03	76,33±0,02	76,45±0,02	77,14±0,015
$KL_2L_3-KL_iL_j$ (keV) exp. moyenne	$5,38_5$±0,015	4,57 ±0,02	4,51 ±0,02	3,81 ±0,03	$0,81_5$±0,015	$0,69_5$±0,02	0
E théor. (keV)							
[AS (58)]	71,784	72,637	72,685	73,407	76,366	76,465	77,076
[HÖ (63)]	71,71	72,55	72,61	73,33	76,28	76,39	77,12
$KL_2L_3-KL_iL_j$ (keV)							
[AS (58)]	5,29	4,44	4,39	3,67	0,71	0,61	0
[HÖ (63)]	5,41	4,57	4,51	3,79	0,84	0,73	0
(présent I exp.(1)	100	154±10	40∓6	-	50±5	25∓3	130±6
travail) I exp.(2)	100	153±10	37∓5	12±3	50±5	27∓3	135±5
I théor. [LI (62)]	100	192		4	73		90
$I(KL_aL_b/ I(KL_iL_j)$ exp.(présent travail)	17,6±1	26,9±1,5	6,7∓1	2,1±0,5	8,8±1	4,6∓0,5	23,3±0,9
théor. [LI(62)]	20	39		0,8	15		18

Tableau IV - a

Par contre les différences d'énergie des doublets des deux raies complexes KL_1L_2 ($^3P_0$ - $^1P_1$) et KL_1L_3 ($^3P_2$ - $^3P_1$) sont en très bon accord avec les deux types de calculs, ce qui est tout à fait normal étant donné le peu de sensibilité de l'énergie aux valeurs de l'interaction électrostatique, à l'intérieur d'une même configuration.

Des valeurs expérimentales des énergies nous avons déduit les fonctions F^k et G^k d'interaction électrostatique qui sont portées dans le tableau IV - b et comparées aux valeurs théoriques :

- Tableau IV - b -

eraction électrostatique	Valeurs déduites du présent travail (eV)	Valeurs théoriques (eV) [AS (58)]	[HÖ (63)]
$F^0(20,20)$	350 ± 30	306	380
$F^0(21,20)$	365 ± 40	285	376
$F^0(21,21)$	380 ± 20	344	383
$F^2(21,21)$	≈ 240	208	239
$G^1(21,20)$	≈ 240	209	238

Les valeurs de ces fonctions sont en bon accord avec celles de Hörnfeldt, les énergies des deux dernières ($F^2(21,21)$ et $G^1(21,20)$) étant données avec le signe ≈ car l'énergie totale est très peu sensible aux variations, même grandes, de ces fonctions.

b) Intensités : Le spectre Auger KLL de ^{233}U se trouve dans une région particulièrement favorable d'énergie, en ce qui concerne la correction de noircissement photographique : en effet cette région correspond au maximum de l'efficacité photographique en fonction de l'énergie (cf. chapître II I - 1 - c), ce qui minimise les erreurs possibles sur les corrections à effectuer.

Les intensités relatives et les décompositions des raies ont été effectuées avec un résolveur de courbe 310 Du Pont. Les résultats sont portés dans le tableau IV - a, soit en ajustant à 100 l'intensité de la raie KL_1L_1, soit en exprimant les intensités des raies en % de transition totale. Dans ce dernier cas, comme la raie KL_3L_3 est masquée par une raie de conversion intense, une valeur interpolée entre les différents résultats expérimentaux présentés dans le tableau IV - e, a été admise. De toutes façons, l'erreur que l'on pourrait commettre en admettant cette valeur se répercute peu sur les intensités, car la raie KL_3L_3 ne représente que 10% de la transition totale.

Dans le tableau IV - a, nous n'avons donné que les intensités calculées par Listengarten [LI (62)] car, comme nous le verrons dans le § A - IV - 3, ce sont ces calculs relativistes qui, bien qu'effectués en couplage j-j pur et ne prévoyant que six raies Auger rendent mieux compte des intensités globales pour des valeurs de Z élevées.

Le plus grand désaccord entre théorie et expérience (2 dernières colonnes du tableau) apparaît sur la raie KL_2L_2 ($^1S_0$) ; nous reviendrons sur ce point, dans le § A-IV - 3, lors de la comparaison théorie expérience en fonction de Z, ce désaccord pouvant s'expliquer par une interaction des états KL_1L_1 ($^1S_0$) et KL_2L_2 ($^1S_0$) appartenant aux deux configurations paires $[(2s)^0 (2p)^6]$ et $[(2s)^2 (2p)^4]$.

On peut en effet constater que l'intensité expérimentale de la raie KL_1L_1 est plus faible et celle de la raie KL_2L_2 plus forte que ne le prévoient les calculs de Listengarten qui ne tiennent pas compte de l'interaction de configurations.

A - IV - Comparaison théorie - expérience en fonction de Z

Nous donnons dans ce chapître une comparaison en fonction de Z entre les différentes théories de l'effet Auger et l'ensemble du matériel expérimental existant jusqu'à ce jour (Mars 1969). Comme précédemment nous sommes obligés de traiter séparément énergies et intensités, car, à ce jour, ce sont des calculs de types différents qui rendent compte au mieux de ces deux grandeurs.

A - IV - 1 - Résultats expérimentaux connus

Le matériel expérimental qui nous a servi de base est reproduit dans le tableau IV - c, en ce qui concerne les intensités, ainsi que les références correspondantes.

D'une façon générale nous n'avons porté sur les figures IV - 13-a à f et IV - 14-a, b et c que les points expérimentaux sans barres d'erreur afin de ne pas surcharger les figures, le nuage de points expérimentaux suffisant à montrer une tendance ; les seules barres d'erreur portées correspondent au cas de Z = 92, étudié dans ce travail.

Z	$K-L_IL_I$ ($^1S_0$)	$K-L_IL_{II}$ ($^1P_1$)	$K-L_IL_{II}$ ($^3P_0$)	$K-L_IL_{III}$ ($^3P_1$)	$K-L_IL_{III}$ ($^3P_2$)	$K-L_{II}L_{II}$ ($^1S_0$)	$K-L_{II}L_{III}$ ($^1D_2$)	$K-L_{III}L_{III}$ ($^3P_0$)	$K-L_{III}L_{III}$ ($^3P_2$)	Réf.
26	0.14		0.33±0.03				1.0			BE(57)$_1$
29	0.11±0.01		0.31±0.02				1.0			BE(57)$_2$
29	1.0	3.1		1.3		1.9	14	1.9		SO(59)
32	1.0	3.3		0.9		1.0	14	2.0		SO(59)
35	1.0	2.19±0.20	0.38±0.05	1.02±0.10	0.62±0.10	0.32±0.10	9.72±0.70	0.41±0.005	2.13±0.20	ER(65)
38	1.0	1.8 ±0.2	0.32±0.16	1.0 ±0.1	0.40±0.15	0.40±0.15	6.7 ±0.6	0.53±0.30	1.7 ±0.2	HO(62)
40	1.0	1.7 ±0.2	0.20±0.13	1.4 ±0.2	0.40±0.15	0.40±0.15	6.7 ±0.6	0.31±0.20	2.1 ±0.2	HO(62)
42	1.0	1.7 ±0.2		1.5		0.35±0.18	5.9 ±0.6	0.35±0.18	1.9 ±0.2	HO(62)
47	1.0 ±0.2	1.3 ±0.2		1.3 ±0.2		0.5 ±0.2	3.2 ±0.4	1.8 ±0.2		JO(53)
52	1.0	1.13±0.07	0.30±0.05	1.16±0.08	0.51±0.06	–	3.69±0.06	0.30±0.07	1.28±0.07	GR(62)
53	1.0	1.07±0.02	0.38±0.04	1.22±0.02	0.46±0.04	–	3.66±0.03	0.42±0.07	1.17±0.02	GR(62)
54	1.0	1.41±0.10		1.73±0.15		–	3.39±0.25	1.44±0.10		ER(61)
55	1.00 ±0.06	1.71±0.07		1.58±0.19	0.42±0.19	–	4.23±0.07	1.91±0.06		GR(61)
56	1.0	1.4		1.8		–	2.9	1.5		MA(60)
57	1.0	1.34±0.08		1.56±0.09		–	3.28±0.10	1.45±0.07		GR(62)
62	1.0 ±0.05	1.39±0.06		1.18±0.06	0.29±0.09	0.26±0.05	3.14±0.13	1.39±0.06		EW(60)
62	1.0	1.20±0.20		1.25±0.20		–	2.8 ±0.3	1.35±0.15		SU(62)
63	1.0 ±0.005	1.41±0.07		1.17±0.08	0.16±0.08	0.20±0.05	2.92±0.16	1.35±0.07		GR(62)
63	1.0	1.2 ±0.3		1.25±0.4		–	2.8 ±0.5	1.25±0.3		SU(61)
64	1.0 ±0.07	1.40±0.10		1.11±0.009	0.19±0.09	0.27±0.07	3.08±0.18	1.28±0.09		EW(61)
65	1.0 ±0.15	1.7 ±0.2		1.27±0.13		0.22 ± 0.07	2.96±0.15	1.14±0.06		PE(62)
66	1.00±0.03	1.31±0.05		0.83±0.05	0.28±0.03	0.22±0.05	2.39±0.05	1.07±0.08		GR(61)
67	1.0 ±0.15	1.51±0.20		1.21±0.15		0.20±0.10	2.80±0.15	1.16±0.05		RY(63)
69	1.00±0.03	1.23 ± 0.07	0.30±0.06	0.83±0.05	0.31±0.05	0.20±0.02	2.44±0.04	0.12±0.03	0.92±0.05	GI(68)
70	1.00±0.02	1.56±0.03		0.93±0.05	0.30±0.08	0.17±0.01	2.53±0.04	1.09±0.02		KA(65)
71	1.0	1.22±0.08	0.30±0.06	0.82±0.05	0.28±0.06	0.20±0.03	2.24±0.04	0.17±0.04	0.87±0.05	GI(67)
71	1.0	1.25		1.05		–	2.52	1.0		VA(62)
74	1.3 ±0.2	2.7 ±0.5		0.9 ±0.2		–	2.5 ±0.4	1.0		GA(58)
75	1.0	1.4		1.1		0.1 ±0.05	2.0	0.95		NE(60)
78	1.0	1.40±0.25		0.90±0.10		0.20±0.10	1.40±0.25	0.80±0.20		EW(57)
78	1.0	1.42±0.18		0.85±0.12		0.19±0.10	1.69±0.22	0.59±0.09	0.062±0.013	TO(67)
78	1.0	1.50		1.0		–	1.5	0.9		DI(62)$_1$
79	1.0	1.54±0.11		0.99±0.09		0.11±0.03	1.83±0.13	0.75±0.07		WO(64)
79	1.0	1.5		1.0		–	1.5	0.9		DI(62)$_2$
80	1.0	1.2		0.7		≲ 0.2	1.4	0.6		BE(53)
80	1.0±0.10	1.68±0.13		0.85±0.10		0.14±0.07	1.84±0.15	0.76±0.08		HE(60)
80	1.0	1.32±0.10		0.85±0.06		0.40±0.03	1.28±0.08	0.76±0.05		NA(60)
80	1.0	1.48±0.11		0.79±0.08		0.19±0.10	1.69±0.16	0.69±0.07		JU(60)
81	1.0	1.67±0.09		0.97±0.10		0.156±0.025	1.66±0.09	0.76±0.05		SU(61)
82	1.0	1.62±0.13		0.87±0.10		0.15±0.04	1.80±0.15	0.75±0.08		ST(60)
83	1.0	1.8		1.1		< 0.20	1.6	0.8		ML(55)
83	1.0	1.72		0.91		0.17	1.64	0.69		ZE(57)
84	1.0	1.45		0.62		0.13	1.36	0.70		GR(56)
94	1.0	1.86±0.10		0.60±0.06	0.05±0.03	0.11±0.04	1.11±0.07	0.40±0.05		EW(59)

D'autre part dans toutes ces figures nous utilisons le code résumé dans le tableau IV - d.

Tableau IV - d

Courbes	Auteurs	Type de couplage	Types d'amplitudes utilisées
—·—·—·—	Asaad et Burhop [AS (58)]	coupl. interm.	Burhop
————	Asaad [AS (63)]$_1$	coupl. interm.	Callan [CA (61)]
ooooooo	Asaad [AS (63)]$_2$	coupl. interm.	Rubenstein, Snyder [RU (55)]
— — — — — —	Asaad [AS (65)]	coupl. interm. + interaction configurations	Callan [CA (61)]
---------	Asaad [AS (65)]	" "	Rubenstein, Snyder [RU (55)]
.....	Listengarten [LI (62)]	j-j pur relativiste	-
xxxxxxxx	Points exp.	-	-
ϕ	Présent travail	-	-

A - IV - 2 - Energies

En ce qui concerne les énergies, nous nous sommes limités aux résultats expérimentaux ayant mis en évidence les doublets des raies complexes, et nous avons reporté ces valeurs sur la figure IV - 4 qui représente l'écart relatif en énergie des doublets. Dans la limite des barres d'erreur l'accord avec

les valeurs de Hörnfeldt est satisfaisant même pour des valeurs élevées de Z. Seule la raie KL_1L_3 présente un léger désaccord dans la région de Z = 40 à 60. Cependant il faut noter que la dispersion des points est grande, dûe aux imprécisions de décomposition des raies.

On peut d'autre part remarquer que pour l'expérience la plus précise et la plus proche en Z (Z = 71), [GI (67)], de notre expérience, on retrouve aussi les mêmes écarts en énergies par rapport aux valeurs de Hörnfeldt : énergies expérimentales légèrement supérieures pour KL_1L_1 et KL_1L_3, et en accord dans la limite des erreurs pour les autres raies.

A - IV - 3 - Intensités

a) Intensités relatives des trois configurations : - $(2s)^0(2p)^6$
- $(2s)^1(2p)^5$
- $(2s)^2(2p)^4$

Les résultats théoriques et expérimentaux sont rassemblés sur les figures IV - 13, a, b et c. L'examen des figures montre que pour les trois configurations l'accord le moins mauvais est obtenu :

- pour la région de Z autour de 30 par les calculs d'Asaad basés sur les amplitudes de Rubenstein et Snyder.

- pour les valeurs élevées de Z, par les calculs relativistes de Listengarten.

- pour les valeurs de Z comprises entre 40 et 60, la courbe expérimentale traverse celles qui représentent les calculs d'Asaad avec les amplitudes de Burhop et avec celles de Callan.

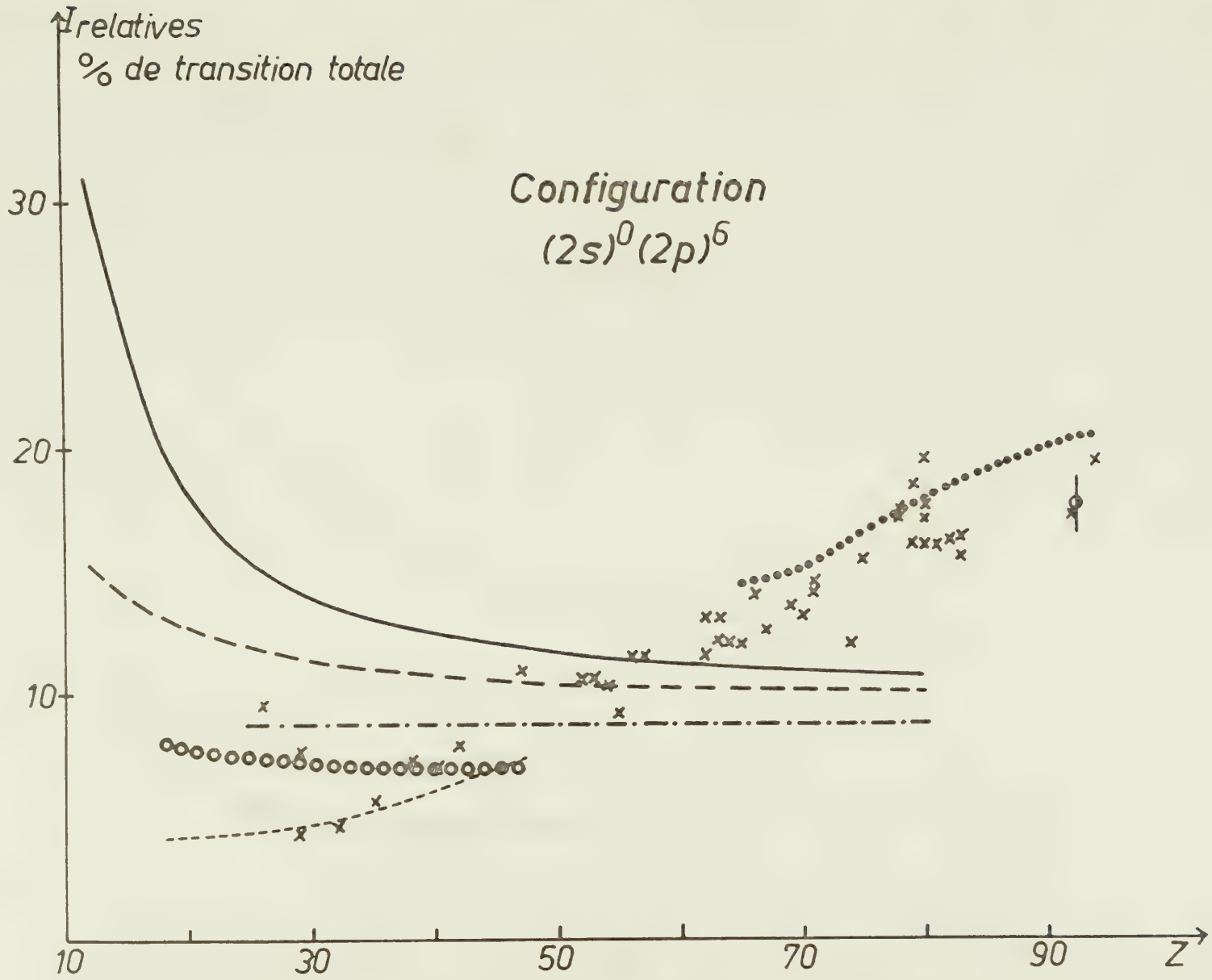

I relatives
% de transition totale
Configuration
$(2s)^0(2p)^6$
30
20
10
10
30
50
70
90
Z

Fig. IV - 13 (a)

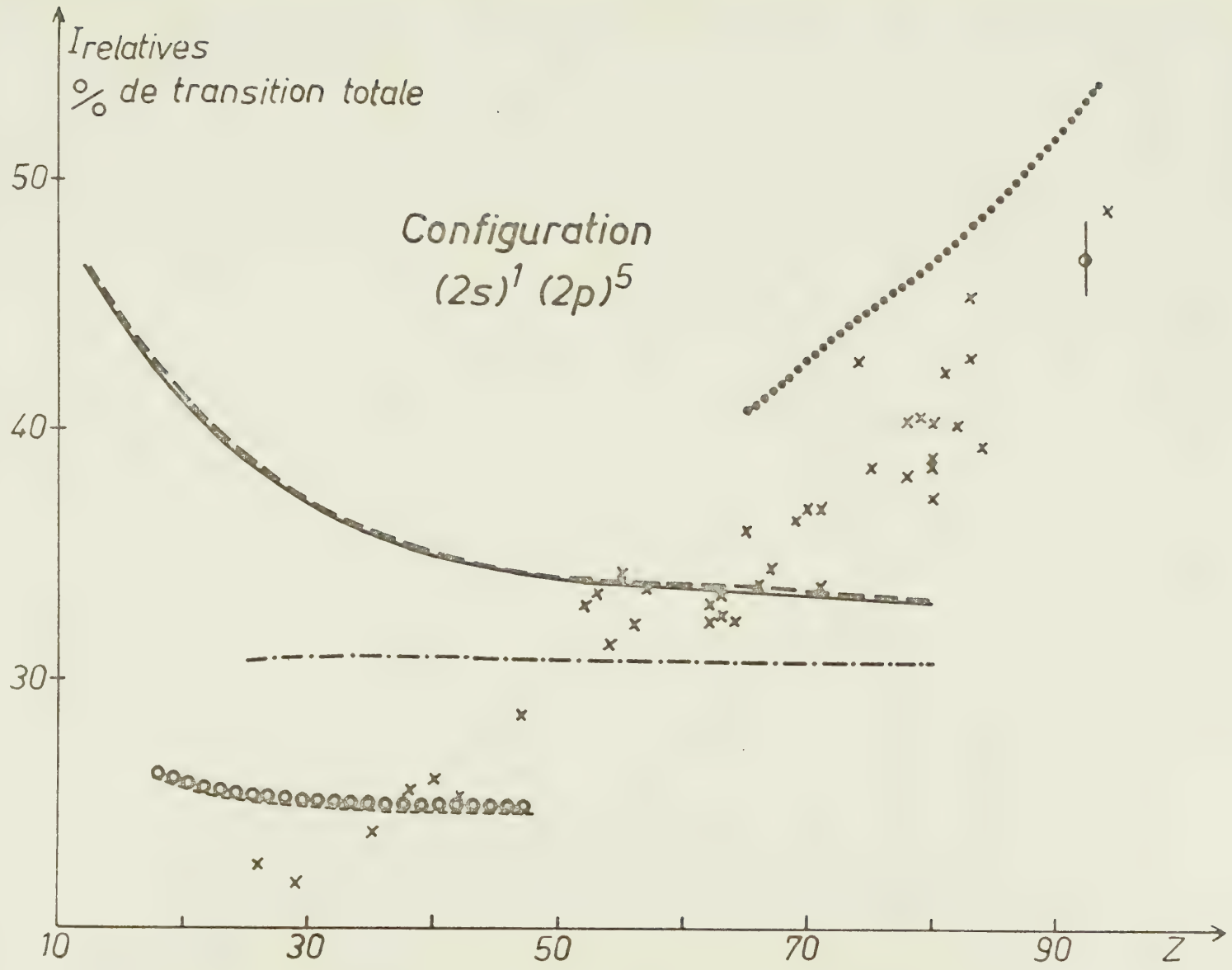

I relatives
% de transition totale
50
40
30
Configuration
(2s)¹ (2p)⁵
10
30
50
70
90
Z

Fig. IV - 13(b)

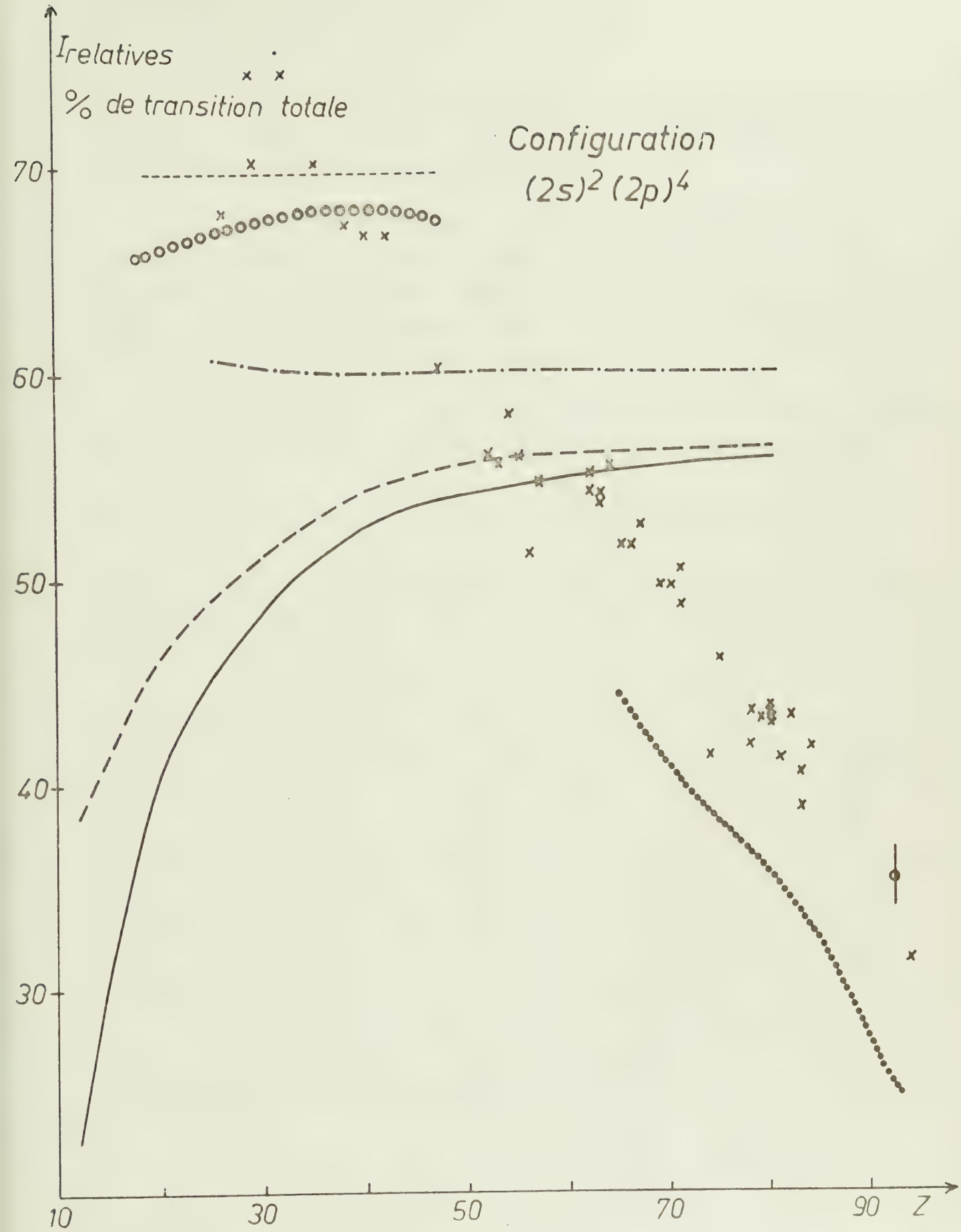

I relatives
% de transition totale
Configuration
(2s)² (2p)⁴
70
60
50
40
30
10
30
50
70
90
Z

Fig. IV - 13 (c)

Ces courbes montrent l'importance des effets relativistes à partir déjà de Z = 60, un ordre de grandeur de ces corrections ayant été représenté sur les figures IV - 9 et 10.

D'autre part, pour les deux configurations paires, et pour des valeurs élevées de Z, les écarts en intensité avec les résultats de Listengarten, écarts de sens opposés pour $[(2s)^0(2p)^6]$ et $[(2s)^2(2p)^4]$, peuvent partiellement provenir de l'interaction entre ces deux configurations pour J = 0.

En effet les fonctions d'onde correspondant aux termes L_1L_1 $(^1S_0)$, L_2L_2 $(^1S_0)$ et L_3L_3 $(^3P_0)$ de J = 0 sont de la forme :

$$\psi_i = C_i\ (^3P_0)\psi(^3P_0) + C_i\ (^1S_0)\psi(^1S_0) + C_i\ (^1S'_0)\ \psi(^1S'_0)$$

avec i = 1, 2, 3, où $\psi(^3P_0)$, $\psi(^1S_0)$, $\psi(^1S'_0)$ sont les fonctions propres des termes $^3P_0$, $^1S_0$, $^1S'_0$ du couplage L-S pur sans l'interaction de configurations.

D'après la forme de la matrice (3 x 3), [AS (65)] correspondant à ces trois termes, lorsque ζ_{21} devient petit, c'est-à-dire pour Z faible, on tend vers une séparation en deux sous-matrices : l'une 1 x 1 pour le terme L_3L_3 $(^3P_0)$, l'autre 2 x 2 faisant interagir les deux états $^1S_0$ des configurations $[(2s)^0(2p)^6]$ et $[(2s)^2(2p)^4]$. C'est pourquoi, pour les faibles valeurs de Z, l'intensité de KL_3L_3 $(^3P_0)$ reste faible (on est proche du couplage L-S pur dans lequel cette raie est interdite), et les intensités des raies KL_1L_1 $(^1S_0)$ et KL_2L_2 $(^1S_0)$ interagissent fortement l'une avec l'autre par l'intermédiaire du terme G^1 (20, 21). L'intensité de KL_1L_1 $(^1S_0)$ étant beaucoup plus grande que celle de KL_2L_2 $(^1S_0)$, l'interaction se fait dans le sens d'un renforcement de la raie KL_2L_2 au détriment de la raie KL_1L_1

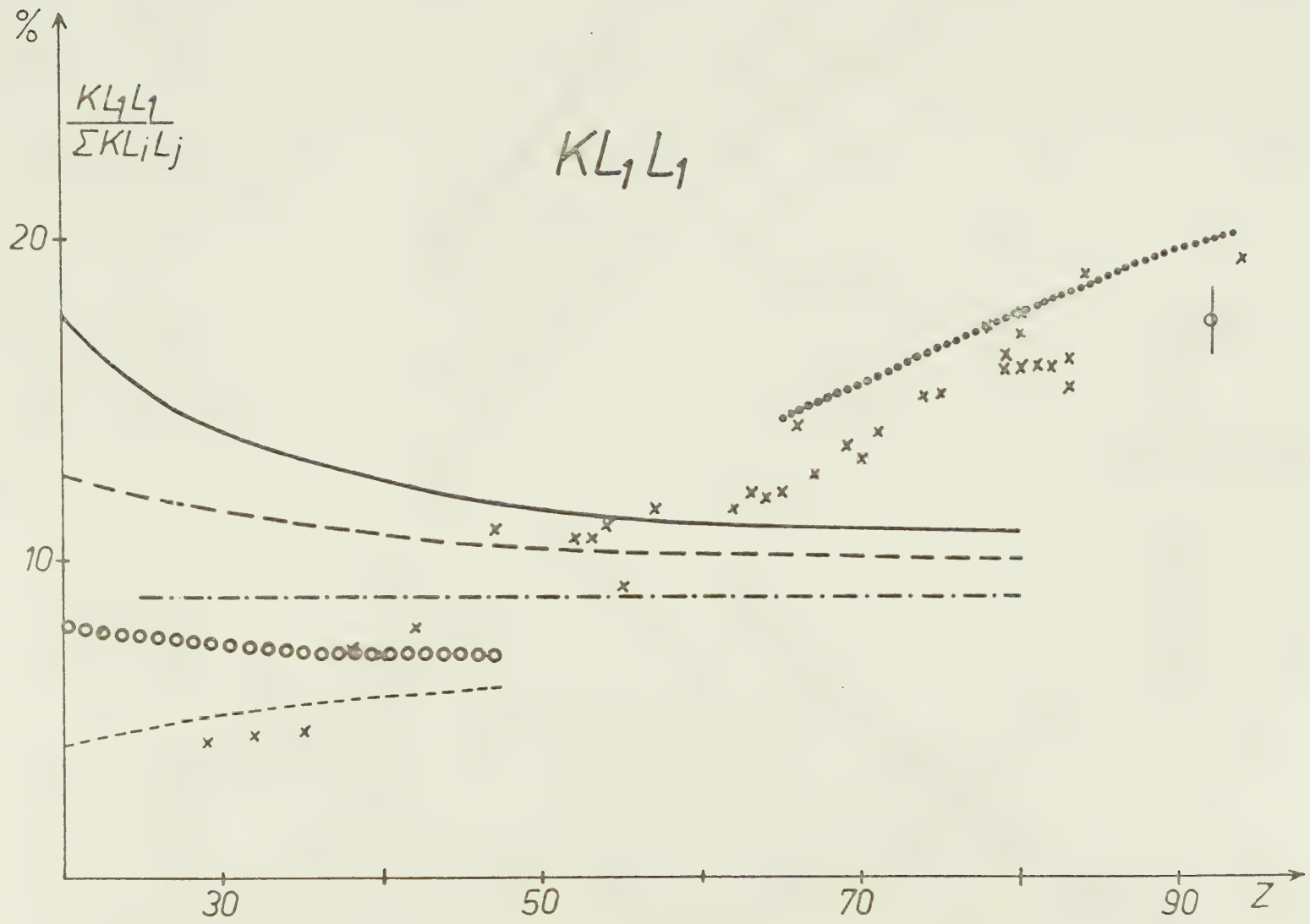


Fig. IV - 14 (a)

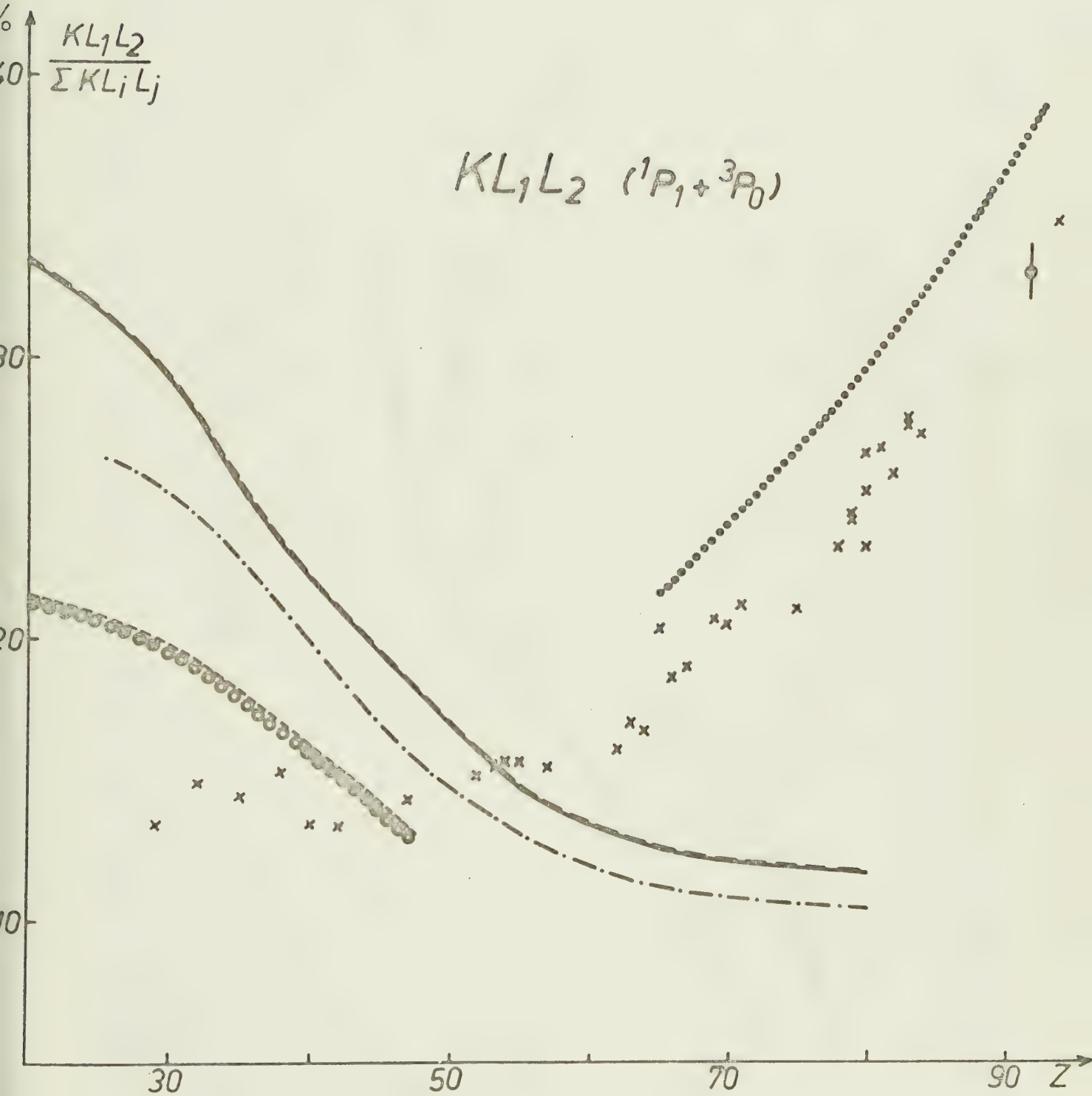


Fig. IV - 14 (b)

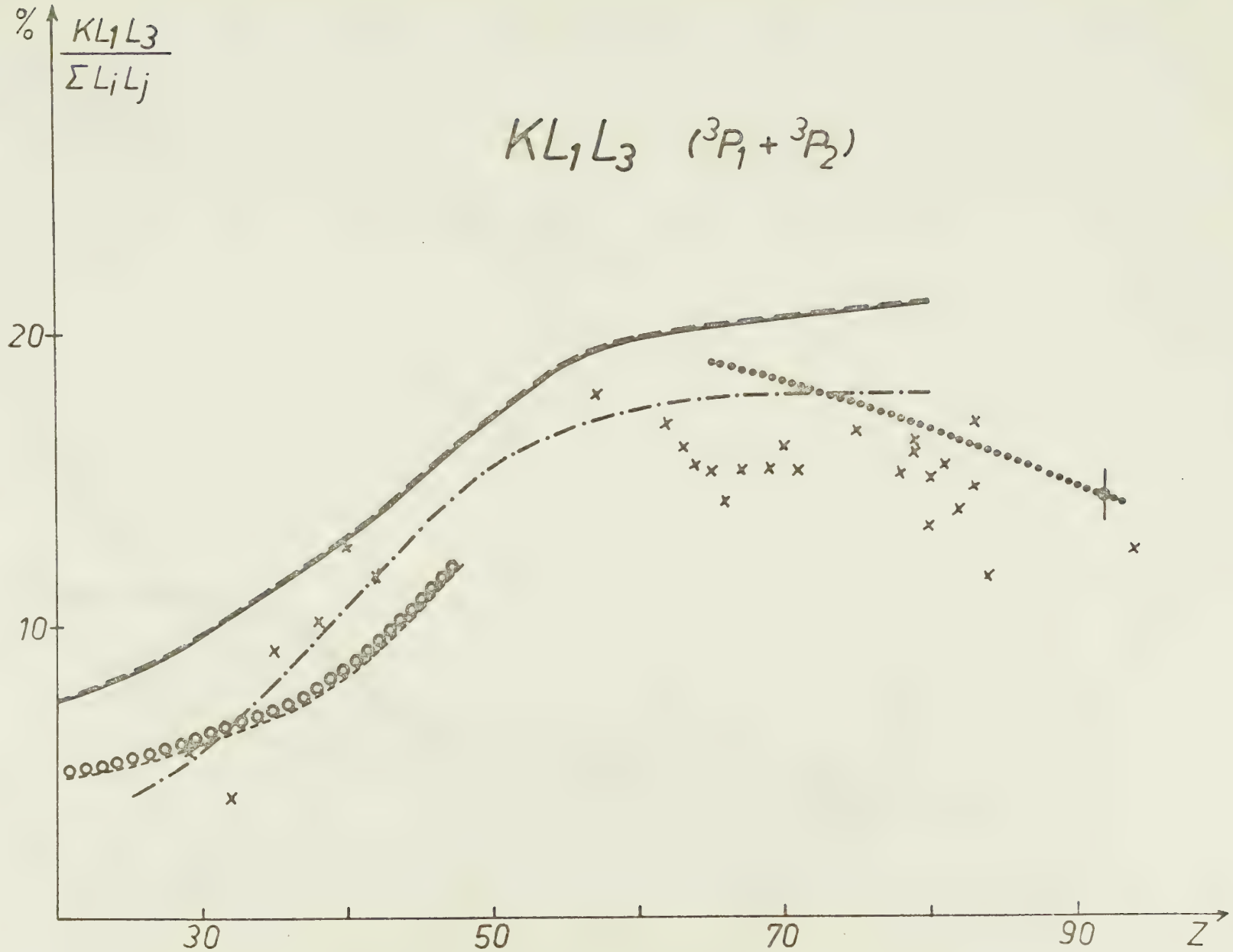


Fig. IV - 14 (c)

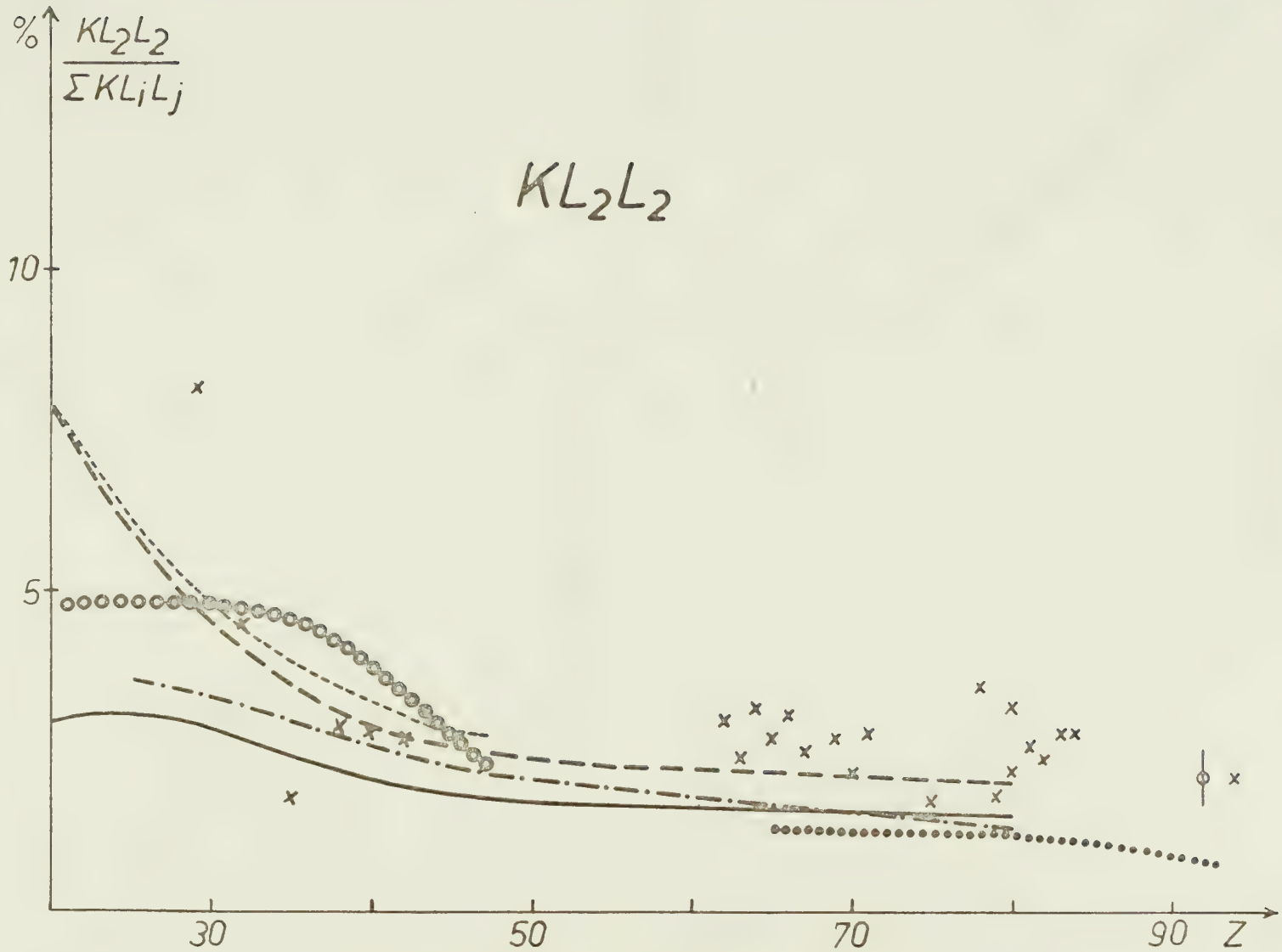


Fig. IV – 14 (d)

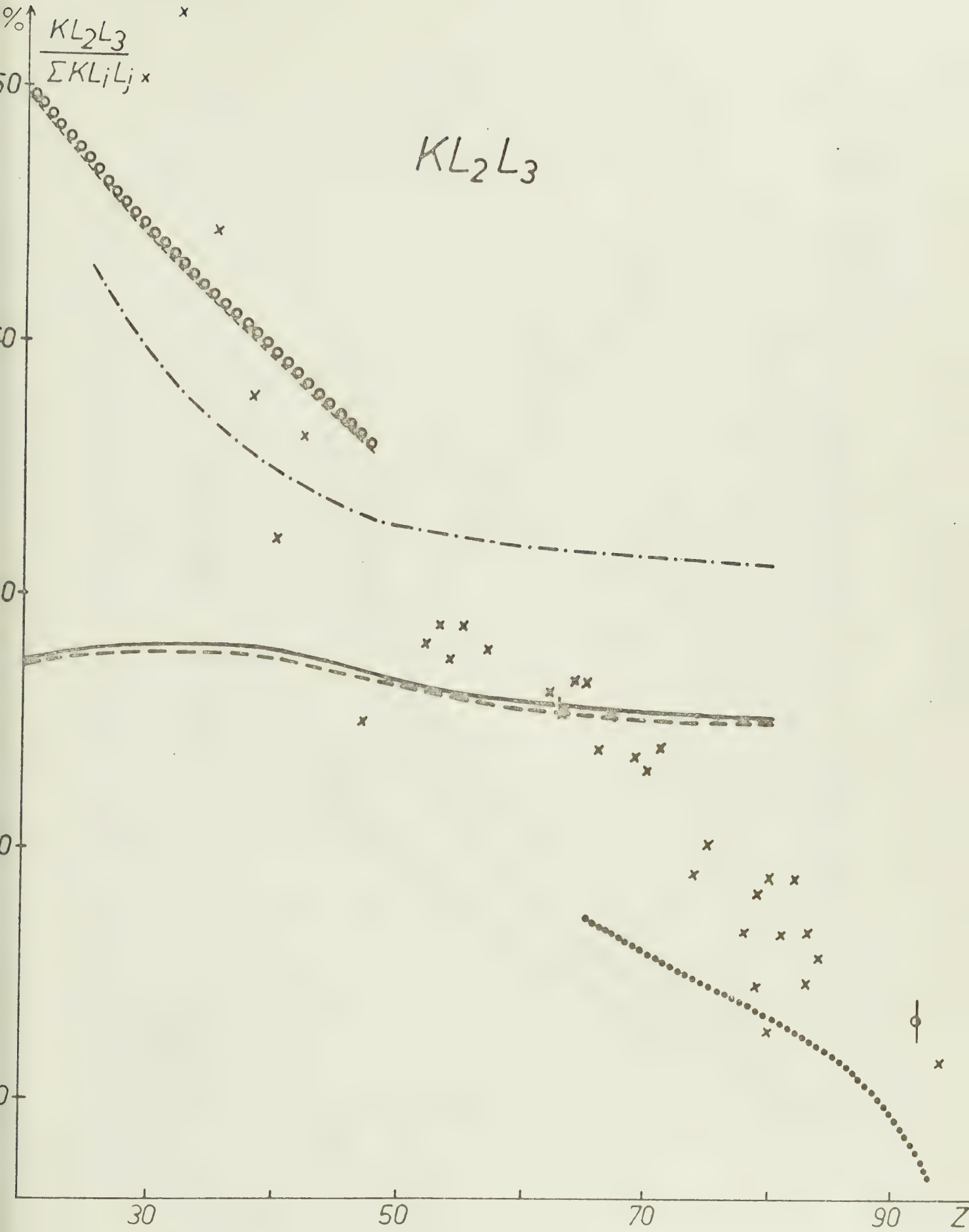


Fig. IV - 14 (e)

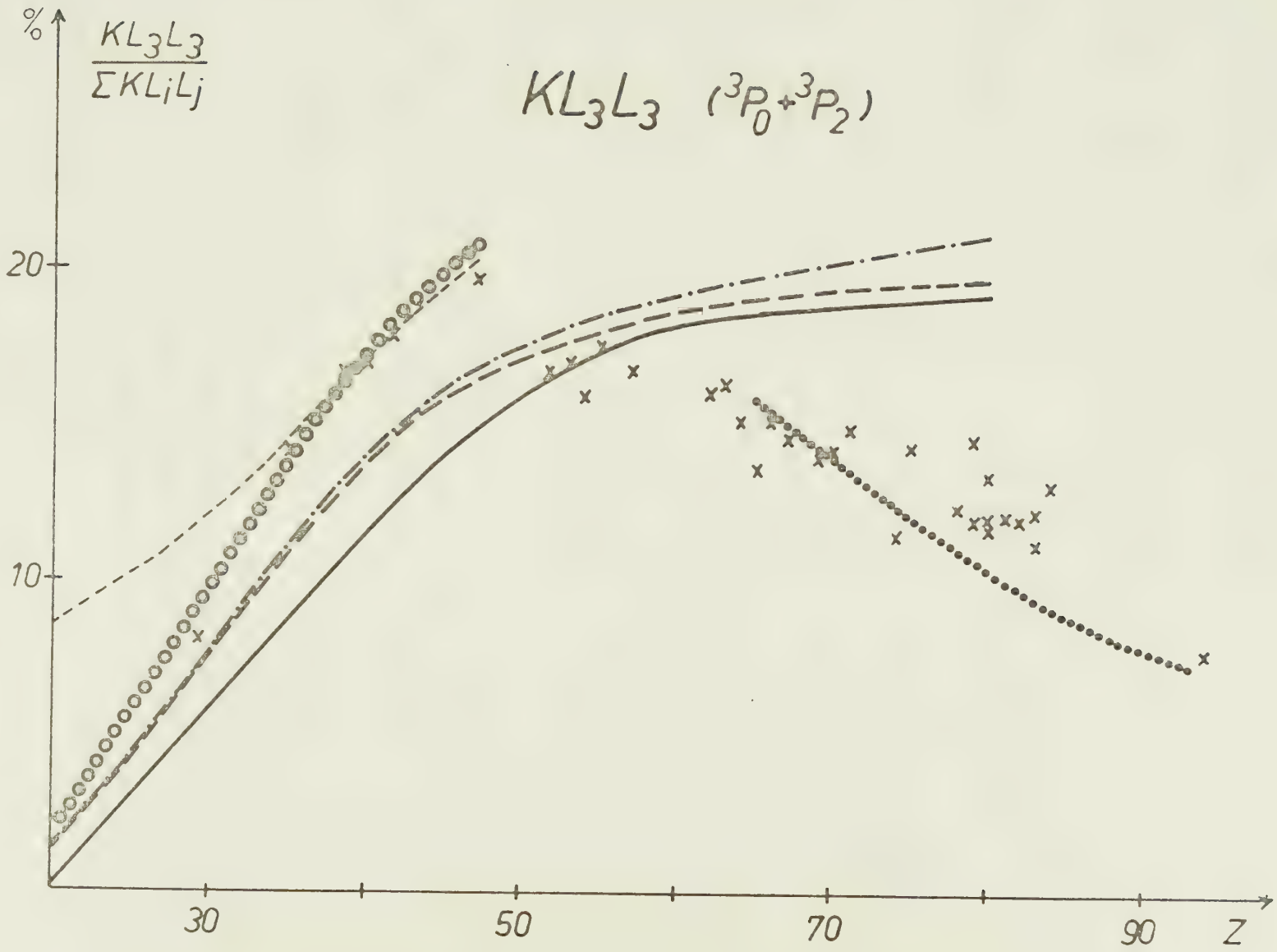


Fig. IV - 14 (f)

C'est ce qui peut expliquer pour les valeurs faibles de Z le gros désaccord avec l'expérience des intensités calculées dans le couplage intermédiaire sans tenir compte de cette interaction (Fig. 13 - a, b, c et 14 - a à f). On peut noter aussi que pour les valeurs de $Z < 40$ l'accord est de beaucoup meilleur avec les amplitudes de Rubenstein et Snyder.

Cette interaction pourrait aussi partiellement expliquer le désaccord observé pour Z = 92, sur l'intensité relative des raies KL_1L_1 et surtout KL_2L_2 (§ A - III - b).

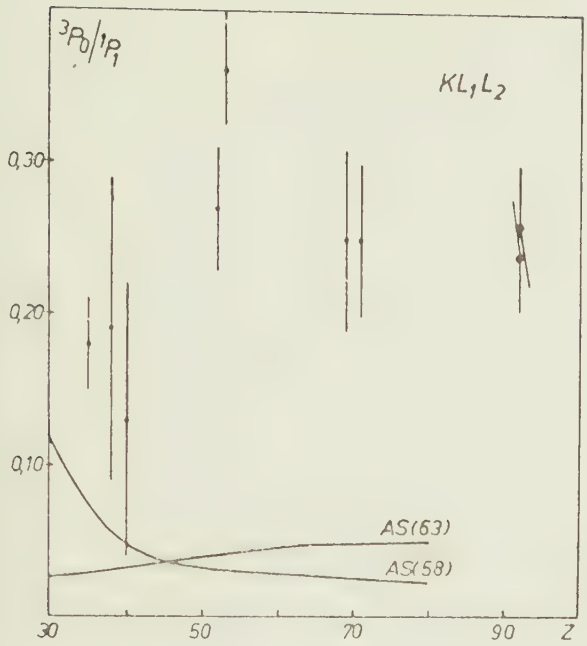
b) Intensités relatives des 6 raies Auger non dédoublées

Comme peu d'expériences ont permis de dédoubler les raies complexes du spectre, nous portons sur les figures IV - 14 a à f les intensités relatives des 6 raies Auger KL_xL_y non dédoublées. On peut aussi constater le désaccord par Z élevé avec les calculs non relativistes du couplage intermédiaire, qui donnent des intensités relatives trop faibles pour les raies KL_1L_1, KL_1L_2, KL_2L_2 et trop fortes pour les raies KL_1L_3, KL_2L_3, KL_3L_3.

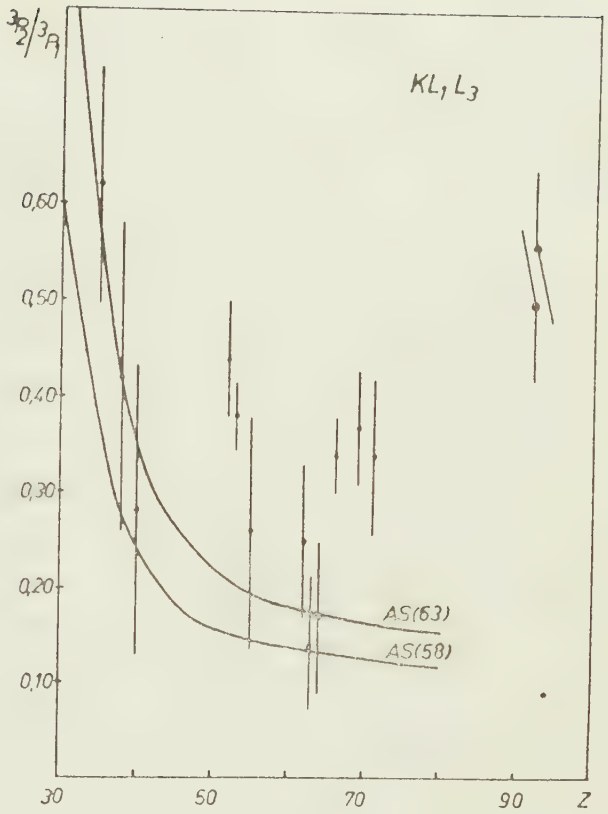
Là encore, comme pour les configurations totales, on retrouve un meilleur accord, pour $Z < 40$, avec les calculs basés sur les amplitudes de Rubenstein et Snyder.

c) Rapports d'intensités des raies complexes

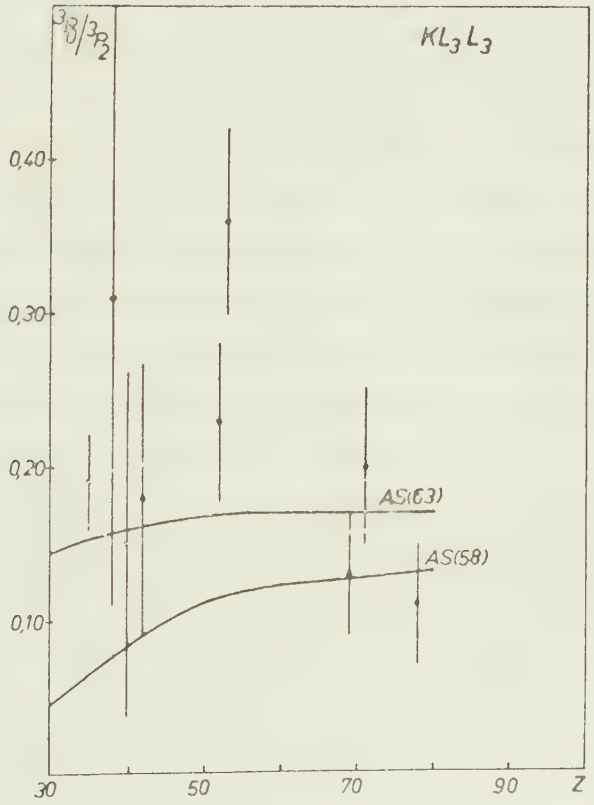
Ces rapports sont donnés sur les Figures IV - 15 a, b et c. Les graves désaccords avec ces calculs non relativistes sont évidents surtout pour les raies KL_1L_2 et KL_1L_3 qui font intervenir la couche L_1 pour laquelle les corrections relativistes peuvent être plus importantes.


$^3P_0/^1P_1$
KL_1L_2
0,30
0,20
0,10
AS(63)
AS(58)
30
50
70
90
Z

(a)


$^3P_2/^3P_1$
KL_1L_3
0,60
0,50
0,40
0,30
0,20
0,10
AS(63)
AS(58)
30
50
70
90
Z

(b)


$^3P_0/^3P_2$
KL_3L_3
0,40
0,30
0,20
0,10
AS(63)
AS(58)
30
50
70
90
Z

(c)

Fig. IV - 15

En conclusion, il n'existe pas à l'heure actuelle de calculs théoriques satisfaisants de l'effet Auger, à la fois pour les énergies et les intensités, et pour toutes valeurs de Z. La preuve expérimentale a été donnée à l'heure actuelle que, même pour des valeurs élevées de Z, le spectre Auger KLL comporte 9 raies dont l'existence est explicable dans le cadre du couplage intermédiaire mais dont les intensités non relativistes calculées jusqu'ici ne sont en accord avec l'expérience que pour un très petit domaine de variation de Z. Pour des valeurs faibles de Z, la considération des interactions de configurations améliore beaucoup l'accord théorie - expérience, surtout avec les amplitudes de Rubenstein et Snyder.
Et pour les valeurs de $Z > 60$, la considération des effets relativistes devient indispensable, mais les seuls calculs relativistes effectués le sont dans le cadre du couplage j-j pur qui ne prévoit que l'existence de 6 raies Auger. En ce qui concerne les énergies, pour toutes les valeurs de Z, dans le cadre du couplage intermédiaire, les seules valeurs dont on dispose sont des valeurs semi-empiriques. Là aussi une connaissance rigoureuse de ces énergies serait très précieuse : en particulier pour les spectroscopistes, cela permettrait des étalonnages de spectres d'électrons de la même manière que la convergence progressive entre énergies de liaison calculées et énergies de liaison déduites de l'expérience donne une base solide aux calculs des énergies des rayonnements X qui peuvent ensuite servir de test dans les spectres γ de basse énergie.

Enfin dans le domaine des valeurs élevées de Z la considération de tous les effets d'interaction est indispensable, ainsi évidemment que celle des effets relativistes et c'est dans ce sens que l'on devrait orienter de prochains calculs de l'effet Auger.

IV - B. Bandes satellites dans les spectres de conversion interne consécutifs à une émission α.

Nous avons mentionné au chapître III, § C - 7, dans le cas des émetteurs α, l'existence de certaines raies d'électrons de conversion présentant des anomalies de profil. Nous avons d'abord observé ces anomalies à l'aide d'un spectrographe magnétique à 180°, avec source directe classique ; dans ces expériences, initialement destinées à observer les bandes Doppler, les sources étaient très minces, ce qui permettait à une grande proportion d'atomes de reculer dans le vide [VA (66), BR (67), BR (68)] . Ultérieurement, devant la nécessité de mieux séparer les propriétés des atomes en vol à la suite du recul α, de celles des atomes arrêtés dans un temps très court dans le support de source, nous avons réalisé la spectrographie des électrons émis uniquement par les atomes en vol à la suite du recul α, la visibilité directe de la source ayant été supprimée [BR(67)$_a$,(67)$_b$,(68),(69)]

IV - B - 1. Mise en évidence par observation des électrons de conversion avec une source directe - Désintégration $^{227}Th \xrightarrow{\alpha} {}^{223}Ra$.

En 1965, lors de l'étude du spectre d'électrons de conversion émis dans la désintégration $^{227}Th \xrightarrow{\alpha} {}^{223}Ra$, nous avons observé pour la première fois une anomalie de forme sur les raies de conversion du rayonnement de 29,9 keV. Dans cette région d'énergie, la comparaison des raies de conversion de ce rayonnement avec celles de la transition de 31,6 keV est facilitée par suite de leur proximité ; en effet les différentes raies L de ces deux transitions se succèdent, par ordre croissant d'énergie, suivant : L_1(29,9) ; L_2(29,9) ; L_1(31,6) ; L_2(31,6) ; L_3(29,9) ; L_3(31,6)

Afin de montrer l'importance de l'effet, la figure IV - 20 reproduit les raies de conversion L_2 des deux rayonnements de 29,9 et 31,6 keV normalisées à la même hauteur.

Les différences essentielles qui apparaissent sont d'une part la diminution de l'épaule Doppler du côté des grandes énergies et d'autre part l'élargissement notable et la présence d'un excédent important du côté des basses énergies pour la raie de la transition de 29,9 keV. Des différences analogues se reproduisent aussi pour les autres raies L et M de ce rayonnement.

Interprétation qualitative

Devant la ressemblance de cette bande située du côté des basses énergies de la raie avec les bandes satellites présentes dans les spectres de rayons X et ayant pour origine la double ionisation de l'atome au moment de l'émission du photon X, nous avons pensé à une interprétation de ce type, (électrons de conversion du rayonnement de 29,9 keV émis dans un atome déjà ionisé), mais en faisant appel à des états de charge beaucoup plus élevée afin de rendre compte des différences d'énergies bien plus grandes que dans le cas des rayons X.

En effet, après une conversion se produisant dans un atome ayant reculé dans le vide, le réarrangement du cortège électronique, par une cascade d'effets Auger et Coster-Krönig, peut laisser l'atome dans un état de charge élevée comme le montraient à cette époque les expériences de Perlman et Miskel [MI (52)], [PE (53)] puis de Snell et Pleasonton [SN (66)] effectuées sur des émetteurs β gazeux à basse pression, et comme l'ont montré depuis, les expériences si concluantes de N. Perrin et W. de Wieclawik [PE (66)], [WI (68)a], [WI (68)b], [WI (69)] et K. Gunter et al. [GU (68)] sur des émetteurs α (cf. § B - 2).

Comme le temps de réarrangement du cortège est bien plus court que les périodes des niveaux nucléaires concernés, excepté naturellement pour les niveaux électroniques très extérieurs, s'il

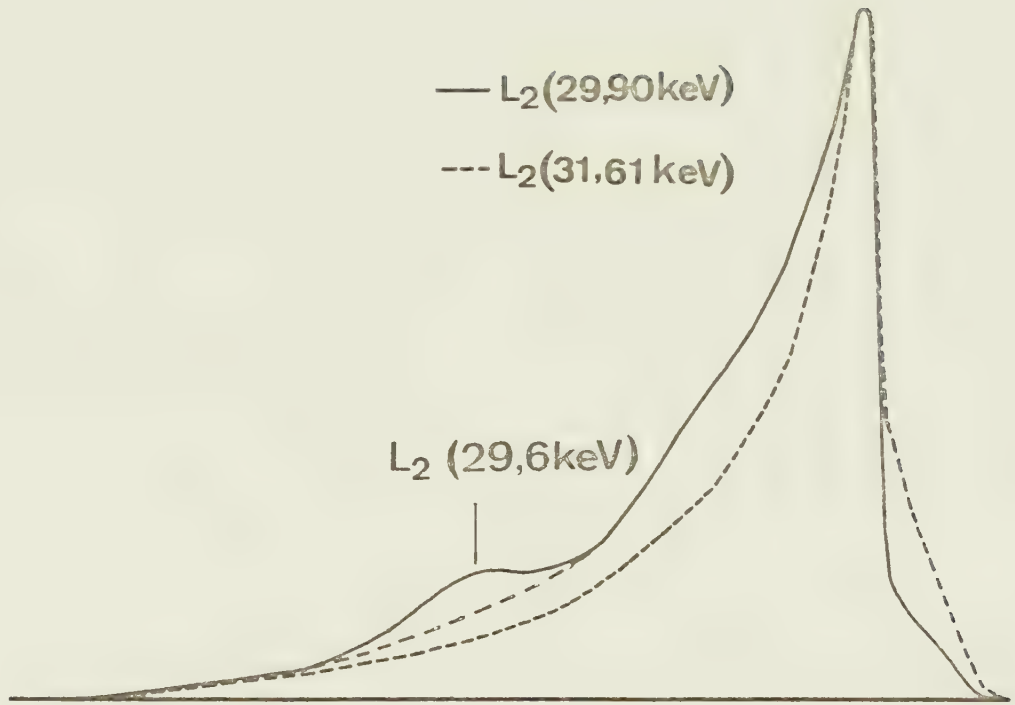


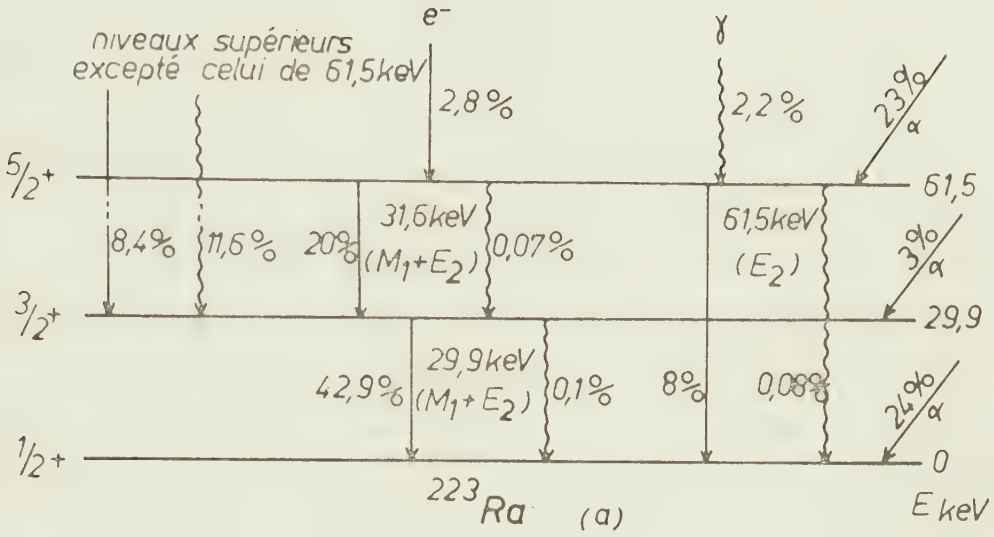
Fig.IV – 20

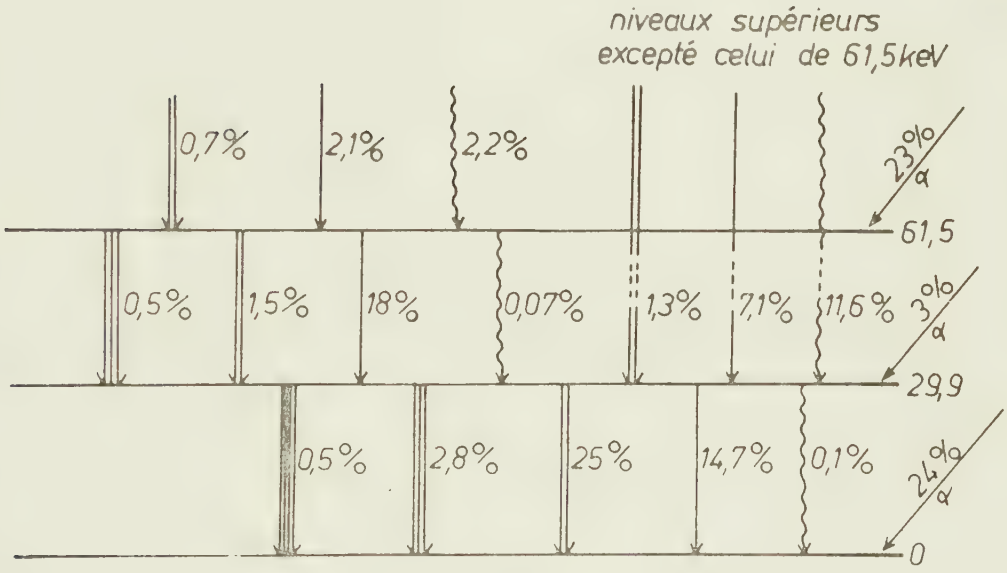
se produit ultérieurement une conversion, c'est dans un atome dont les couches électroniques les plus externes restent dépouillées, puiqqu'il est isolé dans le vide. Dans un tel atome très ionisé, comme nous le verrons au § B - 2, la distribution des charges peut s'étendre jusqu'à une trentaine ; le travail d'extraction des électrons correspondant aux différentes couches est plus grand que s'il s'agissait de l'atome neutre et l'énergie de l'électron de conversion alors émis se trouve donc diminuée.

Nous avons cherché à obtenir, dans ces premières expériences réalisées avec le thorium 227, la forme de ces bandes satellites par comparaison des raies de conversion des rayonnements de 31,6 et 29,9 keV situés en cascade comme l'indique la figure IV-21 (a), qui donne les bilans d'intensité d'alimentation et de désexcitation par α, e^-, γ pour les deux niveaux concernés (61,5 et 29,9 keV).

Analyse des raies de conversion des rayonnements de 29,9 et 31,6 keV.

Grâce aux raies L_2 et L_3 du rayonnement de 31,6 keV nous avons pu construire le profil de la raie d'électrons correspondant aux atomes qui ont reculé dans la source et ont émis des électrons alors qu'il étaient déjà au repos (en effet le temps d'arrêt des atomes dans la source est de l'ordre de 10^{-13} seconde dans un milieu de densité ~ 3 g/cm^3), ces électrons contribuant à la raie usuelle des électrons, comportant une certaine queue d'absorption vers les basses énergies, et que, par la suite, nous appelerons la raie R. Nous avons simultanément obtenu le profil de la bande Doppler, que nous appellerons, par la suite, bande D, correspondant aux atomes qui ont reculé dans le vide et qui n'ont pas subi d'évènement ionisant avant la conversion du rayonnement





(voir code p. 163)

Fig. IV - 21

de 31,6 keV. Le dernier profil a été calculé et vérifié expérimentalement sur la base de l'hypothèse d'une distribution des vitesses de recul comme nous l'avons indiqué au chapître III.

Les différentes décompositions des raies L_2 et L_3 des deux rayonnements sont reportées sur la figure IV- 22 et montrent l'aspect des bandes satellites (que nous noterons bande S) du côté des basses énergies des raies de la transition de 29,9 keV.

Dans cette région d'énergie la principale difficulté d'analyse provient des raies Auger LXY dont le spectre s'étend de 6 à 15 keV. Leur emplacement a été mentionné sur les densitogrammes des raies et c'est la présence de quelques raies Auger de faible intensité qui explique les différences de forme des bandes satellites entre les raies L_2 et L_3. Les intensités de ces raies Auger ont été évaluées en extrapolant les intensités des différentes composantes LXY tabulées par Sant'Ana [SA (63)] pour des valeurs de Z comprises entre 77 et 84. Bien entendu cette évaluation n'est qu'approximative, mais permet néanmoins de fixer des limites pour l'intensité des raies Auger qui se superposent aux raies de conversion, par comparaison avec celles qui sont bien séparées (par exemple les raies $L_2\ M_4\ M_4$ et $L_2\ M_4\ M_5$ situées entre les raies L_2 (29,9) et L_1 (31,6)). C'est pourquoi nous avons représenté les bandes satellites en hachurant une certaine surface dont la limite supérieure correspond à la soustraction de la raie R et de la bande D de la courbe totale sans retrancher les raies Auger superposées, et dont la limite inférieure tient compte approximativement des raies Auger. Dans cette surface hachurée sont aussi inclues les fluctuations d'efficacité photographique et les erreurs provenant du choix du fond, très délicat dans cette région. La courbe réelle représentant les bandes satellites se rapproche donc plutôt de la limite inférieure de la surface hachurée et c'est cette limite que nous prendrons pour évaluer les intensités.

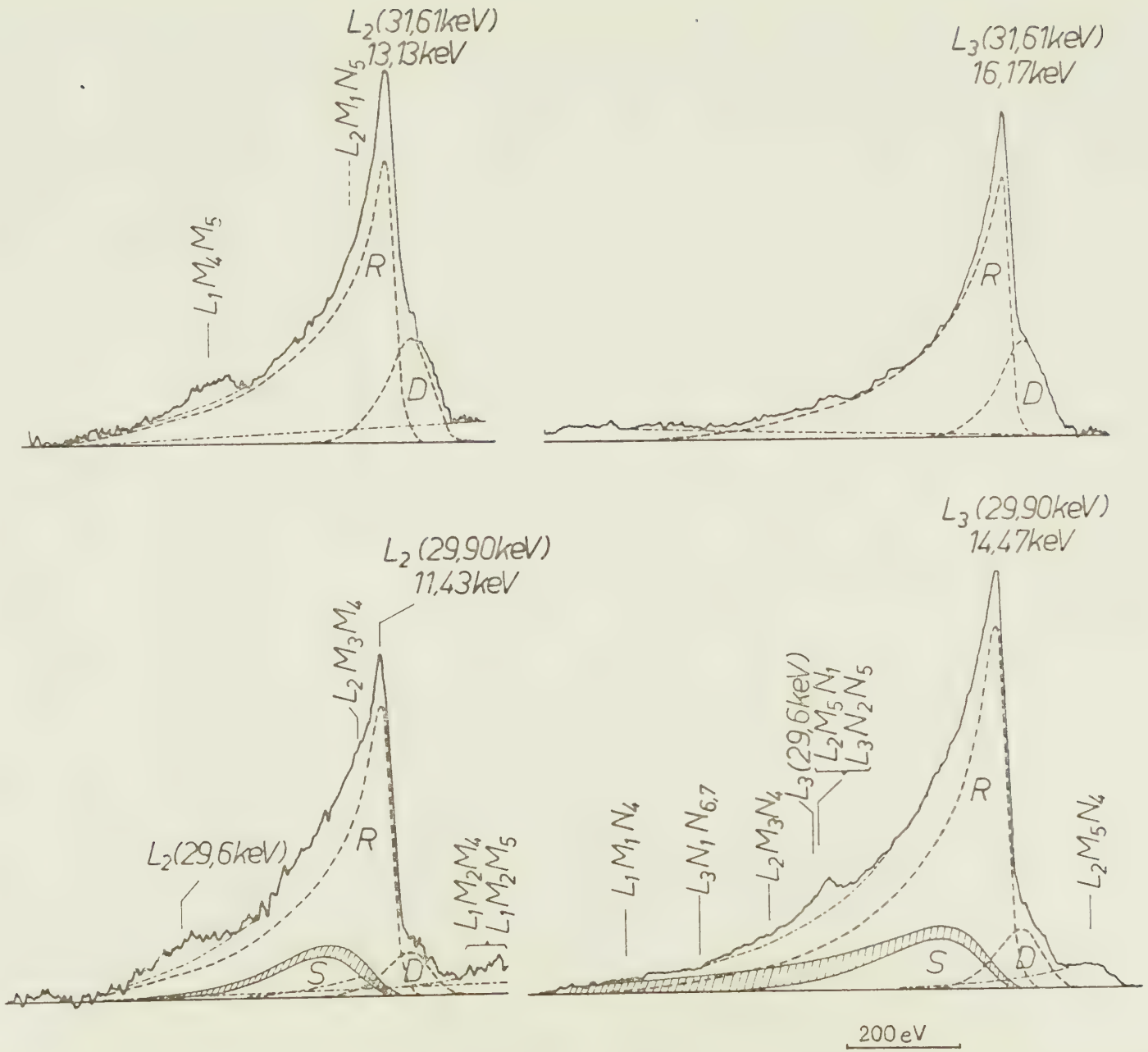

L2(31,61keV)
13,13keV
L2M1N5
L1M4M5
R
D
L3(31,61keV)
16,17keV
R
D
L2 (29,90keV)
11,43keV
L2M3M4
L2(29,6keV)
R
L1M2M4
L1M2M5
S
D
L3 (29,90keV)
14,47keV
L3(29,6keV)
L2M5N1
L3N2N5
L1M1N4
L3N1N6,7
L2M3N4
R
L2M5N4
S
D
200 eV

Fig. IV - 22

Lors de nos premières expériences, nous avions admis l'hypothèse que les deux raies faibles situées à environ - 300 eV du maximum des raies L_2 et L_3 du rayonnement de 29,9 keV pouvaient correspondre aux états de charge plus élevés résultant d'une double cascade de rayonnements convertis ayant précédé la conversion du rayonnement de 29,9 keV. Nous avons vérifié récemment au moyen de coïncidences $\alpha - \gamma$ en multidimensionnel (cf. Chapître III § C - 5), que ces deux lignes sont en fait les raies L_2 et L_3 d'un rayonnement de 29,6 keV ($M_1 + E_2$). En effet, le rayonnement γ de 50,2 keV est trouvé en coïncidence avec le groupe α qui alimente le niveau de 79,8 keV par l'intermédiaire d'un rayonnement de 29,6 keV dont l'intensité correspond bien aux raies d'électrons observées. D'autre part, ceci est bien en accord avec les distributions de charge données par Wieclawik et Perrin (cf. § C - 2) qui observent (figure IV - 28) une distribution élargie et déplacée vers les grandes charges dans le cas où, en plus d'une seule transition convertie, vient s'ajouter une certaine proportion d'alimentation par deux transitions converties.

Finalement on peut dire que par rapport au cas d'une source idéalement mince et sans effet de recul la forme d'une raie d'électrons de conversion est modifiée dans le cas présent de la façon suivante :

- pour des atomes reculant dans le support de source, l'absorption des électrons émis provoque un élargissement qui peut aller jusqu'à plusieurs centaines d'électron-volts à la base de la raie.

- pour des atomes projetés dans le vide, la vitesse de recul provoque, par effet Doppler, un déplacement de la raie vers les grandes énergies avec élargissement dû à la distribution des

vitesses de recul. Si cependant la conversion interne a lieu dans un atome très chargé, à la suite d'une ou plusieurs conversions précédentes, les électrons émis ont des énergies inférieures à celles des électrons de conversion "normale" dans l'atome neutre, cette diminution d'énergie étant d'ailleurs partiellement compensée par l'effet Doppler. La bande Doppler est ainsi diminuée en intensité de la proportion des conversions donnant lieu à l'effet de bande satellite (cf. figure IV - 20), étant bien entendu que la bande satellite globale est la somme des composantes satellites correspondant à chaque état de charge. En première approximation, chacune de ces composantes a un profil identique à celui de la raie Doppler, si l'atome, au moment de la deuxième conversion, est presque revenu à un état d'énergie minimum correspondant à l'achèvement du réarrangement électronique (ceci est le cas pour les niveaux de largeur $\Gamma \gtrsim 10^{-6}$ eV). Etant donnée la largeur de ces composantes, bien supérieure à leur séparation en énergie, comme nous le verrons au § C - 4, elles ne sont pas résolues et leur somme donne une bande continue. Les augmentations d'énergie de liaison dues aux trous dans le cortège électronique sont directement caractérisées par les distances des composantes satellites à la bande Doppler.

Expériences d'accélération et de décélération des électrons

L'un des moyens qui permettent de vérifier que l'origine des bandes satellites est dûe aux atomes en vol, est d'appliquer une tension d'accélération ou de décélération entre la source et la fente de définition du faisceau. Nous avons vu quel était l'effet d'une telle tension de décélération sur les électrons contribuant à la bande Doppler (donc émis en vol), dans le chapître III § C - 7 concernant la mesure des vies moyennes par déformation de la bande Doppler. Pratiquement nous avons utilisé le même dispositif que celui décrit sur la figure II - 8 et la déformation bande Doppler + bandes satellites est globalement

représentée sur la figure IV -23, pour une tension de - 1,5 keV entre source et grille.

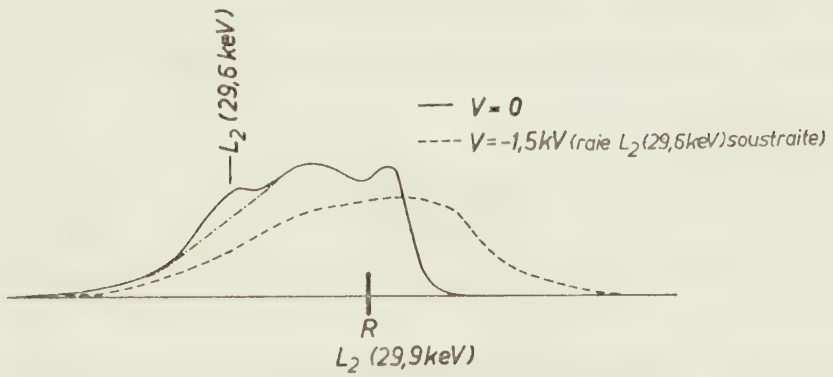


Fig. IV - 23

La raie R correspondant aux électrons émis au repos a été soustraite dans les deux cas avec et sans tension, l'emplacement de son maximum étant indiqué sur la figure. Les électrons émis en vol à une certaine distance de la source sont moins décélérés que ceux qui contribuent à R, on observe donc un déplacement vers les hautes énergies par rapport à R. Par suite de la décroissance exponentielle du niveau, ce déplacement s'accompagne d'un élargissement des bandes correspondant aux électrons émis en vol, car le gradient de champ près de la surface de la source est très important dans ce type de géométrie (chapître III § C - 7).

Au contraire si l'on applique une tension d'accélération des électrons entre la source et la fente de définition du faisceau, les électrons émis à une certaine distance de la source

sont moins accélérés que ceux qui sont émis au repos dans la source et on observe un déplacement des électrons émis en vol vers les basses énergies par rapport à la raie R, toujours avec élargissement dû à la décroissance exponentielle du niveau. La figure IV- 24 montre cet effet de l'accélération qui "fait ressortir" les bandes d'électrons émis en vol vers les basses énergies de la raie d'électrons émis au repos.

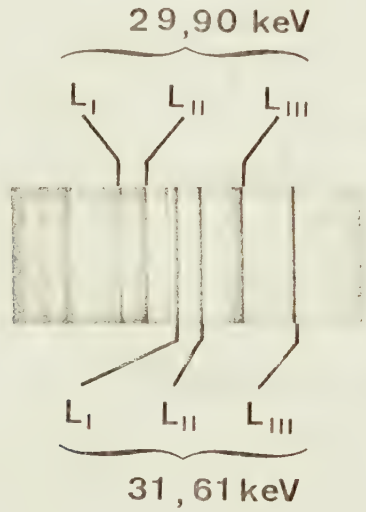


Fig. IV- 24

Expériences de Chalk River [GE (67)] et [GE (68)]

En 1967, Gelletly et Geiger*, du laboratoire de Chalk River, ont vérifié d'une façon très probante l'existence des bandes satellites et leur origine dans les atomes de recul en réalisant des coïncidences $\alpha - e^-$ dans le spectromètre à double focalisation $\pi\sqrt{2}$ de 100 cm de rayon de Chalk River. De cette façon, en

je tiens à remercier ici vivement MM. J.S. Geiger et W. Gelletly pour l'amabilité qu'ils ont eu de nous communiquer leurs résultats avant publication et pour les discussions au cours des recherches.

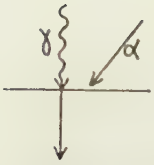
détectant les électrons en coïncidences avec les particules α émises vers l'arrière du support de source mince, ils sélectionnaient uniquement les évènements ayant lieu dans des atomes en vol, éliminant ainsi la raie R des électrons émis au repos, qui est très gênante dans le cas d'une source directe. C'est ce que montre la figure IV- 25 qui reproduit les résultats de Gelletly et Geiger pour la raie L_3 du rayonnement de 29,9 keV. On voit que cette méthode a le grand avantage de faire clairement ressortir les bandes Doppler et satellites sans interférence avec la raie directe, toujours affectée d'une queue d'absorption des électrons ralentis dans le support.

Nous reviendrons plus en détail sur la comparaison de ces résultats avec nos expériences et en particulier lorsque nous décrirons un dispositif qui nous a permis, dans le cas d'^{241}Am, de n'observer aussi que les électrons émis par des atomes en vol, par des moyens tout à fait différents de ceux utilisés à Chalk River.

Schéma de niveaux - Bilans d'intensités

D'après l'ensemble de nos résultats concernant l'étude de la désintégration $^{227}Th \xrightarrow{\alpha} {}^{223}Ra$ (chapître III) nous avons pu établir les bilans d'intensité d'alimentation et de désexcitation par α, γ, e^- (figure IV- 21), les alimentations d'un niveau par α ou γ ne provoquant que peu ou pas d'ionisation de l'atome, tandis que l'alimentation d'un niveau par des transitions converties conduit à des degrés d'ionisation plus ou moins grands suivant le nombre de cascades qui a précédé (cf. figure IV- 28 du § C - 2).

Sur la figure IV- 21 (b), nous avons donc détaillé les différents modes d'alimentation et de désexcitation des niveaux en adoptant la convention suivante :



conversion précédée d'une alimentation peu ou pas ionisante (α ou γ) du niveau.(D)

conversion précédée d'une transition convertie.(S_1)

conversion précédée de deux transitions converties.(S_2)

conversion précédée de trois transitions converties.(S_3)

De ce schéma on peut déduire les intensités relatives des différentes composantes d'une raie de conversion du rayonnement de 29,9 keV :

$$(I_S/I_D)_{calc} \sim 2$$

tandis que les intensités correspondant aux bandes satellites que nous avons appelées S_1, S_2, S_3, suivant le nombre de cascades de transitions converties qui précèdent, sont dans les rapports :

$$I_{S_1}/I_{S_2}/I_{S_3} = 1/0,11/0,02$$

Tous les rapports d'intensités concernant des électrons émis en vol ne dépendent que des différents modes d'alimentation et ne dépendent pas du taux de recul de la source. Il n'en est pas de même si l'on s'intéresse à des rapports d'intensités faisant intervenir la raie R des électrons émis au repos. En effet, si r est ce taux de recul, que l'on peut calculer d'après le rapport $\frac{I_D}{I_R + I_D}$ pour les raies du rayonnement de 31,6 keV, on a :

$$\frac{I_R\ (29,9)}{I_R + I_D + I_S} = 1 - r$$

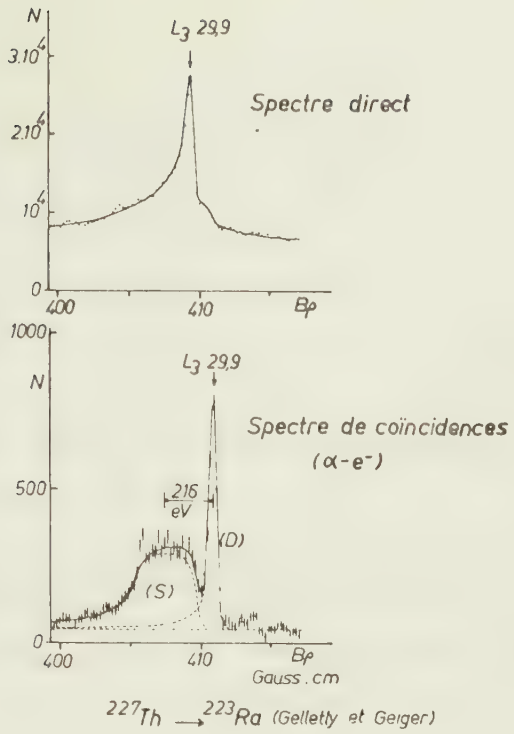


Fig. IV - 25

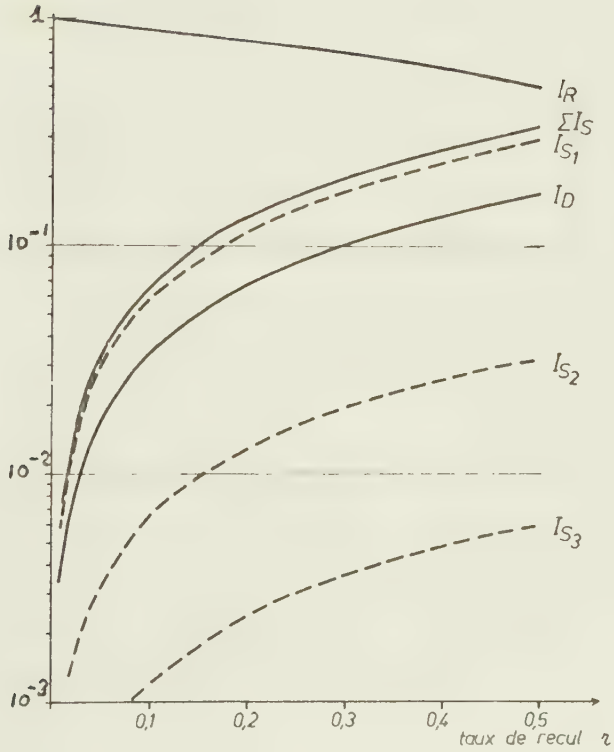


Fig. IV - 26

$$\frac{I_D\ (29,9)}{I_R + I_D + I_S} = 0,34 \times r$$

$$\frac{I_S\ (29,9)}{I_R + I_D + I_S} = 0,66 \times r$$

et la figure IV-26 montre l'importance des différentes composantes en fonction du taux de recul r.

Comparaison avec les résultats expérimentaux

Intensités : D'après les rapports $\frac{I_D}{I_R + I_D}$ des raies L_2 et L_3 du rayonnement de 31,6 keV, (fig. IV- 22) on a pu évaluer le taux de recul de la source à $r \sim 0,20$, et comparer (tableau IV - e) les intensités relatives expérimentales des différentes composantes avec les valeurs calculées d'après le schéma de la figure IV- 21 .

Tableau IV - e

	I_S/I_D	I_S/I_R	I_D/I_R
L_2 (29,9 keV) exp.	2,0	0,19	0,095
L_3 (29,9 keV) exp.	1,9	0,20	0,10
calcul	1,95	0,16	0,085

Dans la marge des erreurs que l'on peut voir représentées sur la figure IV - 22, on peut dire que les résultats expérimentaux et calculés sont en accord, ces derniers n'étant eux-mêmes entachés que d'une erreur de quelques % car ils résultent d'un ensemble cohérent de bilans d'alimentation et de désexcitation des niveaux.

Cependant les raies L du rayonnement de 31,6 keV avec lesquelles ont été analysées les raies L de la transition de 29,9 keV contiennent elles-mêmes une faible composante satellite. L'examen du schéma IV - 21 montre qu'avec un taux de recul de 20% le rapport $I_S/I_R = 2,5\%$; nous n'en avons donc pas tenu compte (notons que pour ce rayonnement $I_S/I_D \sim 10\%$).

Energies

Pour les raies L_2 et L_3 du rayonnement de 29,9 keV, la distance en énergie du maximum de la bande D au maximum de la bande S a été estimée à 160 ± 30 eV, la queue des bandes satellites vers les basses énergies s'étendant jusqu'à environ 600 eV.

Ce résultat est en léger désaccord avec les valeurs données par Gelletly et Geiger [GE (68)] pour ces mêmes raies :

239 ± 32 eV pour la raie L_2
et 216 ± 25 eV pour la raie L_3

Ce désaccord ne peut s'expliquer par des conditions de vide qui auraient pu être différentes dans les deux expériences. Nous verrons que cette question de vide et de recombinaison éventuelle des atomes dans le gaz résiduel peut devenir importante dans le cas de ^{237}Np, si le vide n'est pas inférieur à 10^{-5} mm de Hg, car la vie moyenne du niveau est de 63 ns; mais ce n'est pas le cas ici car les vies moyennes concernées sont de quelques 10^{-10} s et les parcours dans le vide correspondants sont de quelques centièmes de mm.

Mais cet écart avec nos mesures peut trouver son explication dans le choix du détecteur α utilisé dans l'expérience de coïncidences : scintillateur plastique rapide et permettant un taux élevé de coïncidences, mais au prix d'une résolution médiocre.

Ainsi les groupes α compris dans les coïncidences englobent en particulier le niveau de 79,8 keV qui alimente le niveau de 29,9 keV par la cascade de rayonnements très convertis.

$$79{,}8 \text{ keV} \xrightarrow{(29{,}6)} 50{,}2 \text{ keV} \xrightarrow{(20{,}3)} 29{,}9 \text{ keV}$$

Les raies de conversion du rayonnement de 29,6 keV viennent donc se superposer aux bandes satellites des raies de la transition de 29,9 keV à 330 eV du maximum de la bande Doppler. Il faut noter que les bandes Doppler des deux rayonnements de 29,6 et 29,9 keV ne sont pas dans le même rapport que les raies R de ces mêmes rayonnements dans le cas d'une source directe. En effet, les proportions d'alimentations peu et très ionisantes des niveaux de 29,9 et 79,8 keV, (origine du rayonnement de 29,6 keV), sont différentes et nous avons évalué :

$$I_R\ (29{,}9)/I_R\ (29{,}6) \sim 12$$

$$I_D\ (29{,}9)/I_D\ (29{,}6) \sim 5$$

avec d'autre part $I_D\ (29{,}6)/I_S\ (29{,}6) = 7$

Finalement dans les expériences de coïncidences, la soustraction de ces raies de conversion du rayonnement de 29,6 keV conduit à une diminution de l'écart en énergie des maxima des bandes Doppler et satellites et l'accord entre les deux types de mesures est alors réalisé dans la limite des barres d'erreur.

Nous reviendrons dans le § C - 4 sur ces questions d'énergie et leur comparaison avec les calculs théoriques, car il faut tenir compte, dans l'analyse des bandes satellites, de la distribution de charge des atomes de recul et des écarts en énergie pour chaque état de charge, le tout étant convolué par la forme de raie correspondant aux électrons émis par les atomes en vol et donnée, en bonne approximation, par la forme de la raie Doppler normale.

IV - B - 2. Etude des états de charge résultant d'une conversion dans un atome isolé.

Dans le domaine d'énergie qui nous concerne ici, les premiers travaux liés à l'idée d'état de charge d'un atome à la suite d'une excitation extérieure remontent à l'interprétation des bandes satellites dans les spectres de rayons X, par Wentzel [WE (21), WE (25)] , interprétation qui tient compte de la double ionisation des atomes provoquée par bombardement électronique. Ultérieurement, devant l'impossibilité de rendre bien compte, par cette seule hypothèse, des caractéristiques des bandes satellites présentes dans les spectres XL, Coster et Krönig [CO (35)] ont attribué l'existence de certaines bandes très intenses, présentant des variations d'intensité discontinues en fonction de Z, à une double ionisation de l'atome dûe à des transitions Auger à l'intérieur d'une même couche, avec expulsion d'un électron d'une couche plus extérieure. Ces bandes satellites ont fait par la suite l'objet d'études plus précises, en particulier par Richtmyer et al. [RI (34)] , Valadares et al. [VA (40), VA (47)] et Y. Cauchois et al. [CA (44), HU (48)] (pour une bibliographie plus détaillée, il convient de se reporter à Burhop [BU (52)]).

Ultérieurement, le problème du "shake-off" des électrons consécutif à une variation "soudaine" de la charge effective du noyau, (par exemple dans le cas de l'émission α ou β), a été traité aussi bien expérimentalement que théoriquement par différents auteurs, en particulier par Migdal [MI (41)] , Feinberg [FE (41)] , Carlson, Krause et al. [CA (68)] (pour une bibliographie plus complète, voir par exemple [SN (66)].

Si aucun autre phénomène nucléaire n'intervient, l'émission α et l'émission β conduisent à des distributions de charges faibles assez semblables, avec prédominance de la charge 1 et diminution rapide de la fréquence des charges 2, 3 ...

La première mise en évidence de charges beaucoup plus élevées remonte aux expériences de Perlman et Miskel [MI (52)]

[PE (53)] qui montrèrent en particulier que la transition isomérique (très convertie) de $^{131m}Xe \rightarrow {}^{131}Xe$ élève la charge de l'atome isolé à la valeur moyenne de 8,5 et donnèrent une interprétation quantitative sur la base d'un mécanisme proposé par Cooper [CO (42)] : multiplication des lacunes au fur et à mesure que l'énergie disponible provoque des cascades d'effets Auger et Coster-Krönig.

Ce phénomène a été ensuite étudié par Snell et Pleasonton sur des atomes de gaz rares radioactifs à basse pression, analysés par déflection magnétique. L'ensemble de ces expériences sur ^{6}He, ^{23}Ne, ^{37}Ar, ^{41}Ar, ^{79}Kr, ^{85}Kr, ^{131m}Xe, décrit par Snell dans α - β - γ Ray Spectroscopy [SI (66)] , a montré que les distributions de charges sont d'allure gaussienne pour chaque mécanisme provoquant l'ionisation (conversion, shake-off).

Puis, Carlson et Krause ont procédé aussi à l'analyse des distributions de charges de gaz, d'une façon un peu différente : ils irradiaient par rayons X le gaz inactif et utilisaient ensuite un dispositif de déviation magnétique pour l'analyse des ions [CA (65) , CA (66), KR (67)] . Leur méthode permet, en faisant varier l'énergie des rayons X, d'obtenir des distributions de charge en fonction de la vacance initiale, comme le montre la figure IV - 27 . Ces auteurs obtiennent un accord des résultats expérimentaux avec les calculs en tenant compte du processus de "shake-off" des électrons.

En ce qui concerne l'émission α, l'état de charge de l'atome n'a pas pu être étudié de la même façon par suite de la très grande énergie des atomes de recul (> 100 keV).

Ce même phénomène d'ionisation des atomes après une conversion interne succédant à une émission α a été mis en évidence parallèlement par deux méthodes différentes :

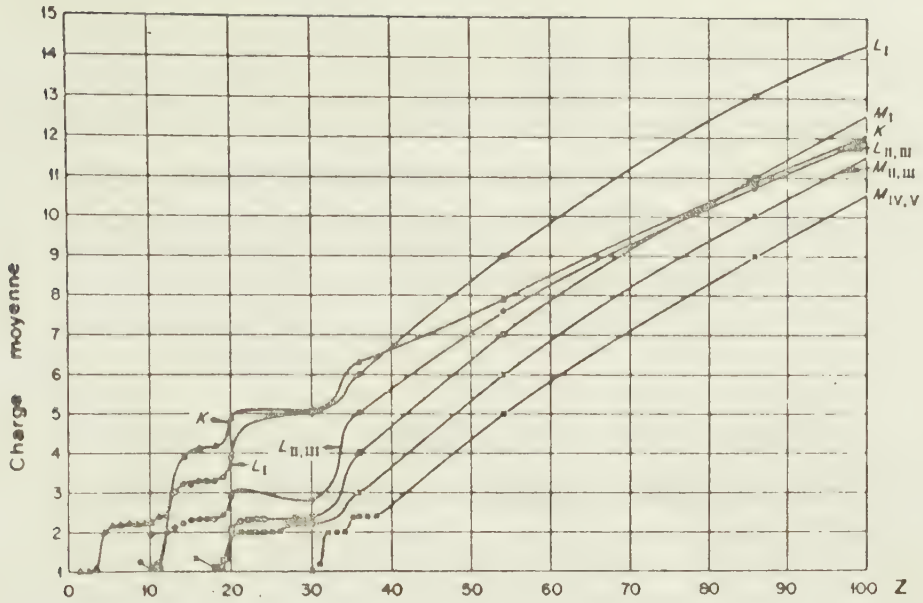
- analyse par déflection magnétique des atomes de recul de ^{226}Th, par Günter et al. [GU (66)] , méthode qui permet, lorsque la source est extrêmement propre, de départager les raies pour chaque charge, en composantes provenant, soit du niveau fondamental, soit du niveau excité dont la désexcitation par conversion interne provoque l'apparition des charges élevées.

- analyse par méthode de temps de vol par Perrin et Wieclawik [PE (66), WI (68), WI (69)] qui ont réalisé des expériences sur la désintégration α de ^{212}Bi, ^{227}Th, ^{223}Ra, ^{241}Am. Leur méthode est basée sur l'application aux atomes de recul, par champ électrostatique, d'une accélération proportionnelle à la charge, suivie d'une mesure de la distribution des vitesses au moyen d'un dispositif à temps de vol. La base de temps est déclenchée par la particule α détectée par jonction, et ceci permet de mesurer la distribution des vitesses des atomes de recul correspondant à un niveau initial donné.

Pour les trois premiers corps cités, les périodes des niveaux examinés variant entre 10 et 600 ps, la distance parcourue depuis la source est alors inférieure à 0,2 mm pour que l'atome se trouve dans son état de charge définitif. Pour le niveau de 59,5 keV de ^{237}Np, cette distance moyenne se monte à 25 mm, et il est nécessaire d'introduire sur le trajet une longueur sans champ assez grande avant d'atteindre la région où les atomes subissent une accélération après avoir atteint l'état d'aquilibre.

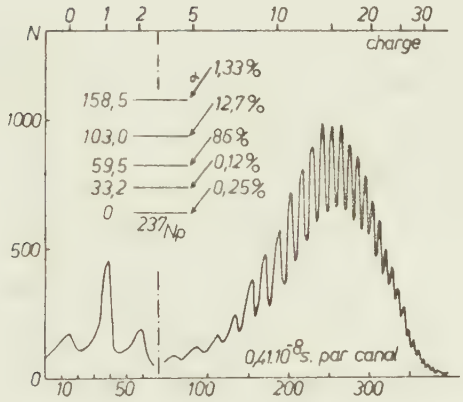
Nous renvoyons à la thèse de Wieclawik [WI (69)b] pour une description et une bibliographie plus complètes. Nous donnons cependant ici sur la figure IV-28 les résultats trouvés par Wieclawik pour ^{241}Am car ces données seront nécessaires à l'interprétation quantitative de nos expériences sur les électrons émis par des atomes de ^{237}Np en vol.

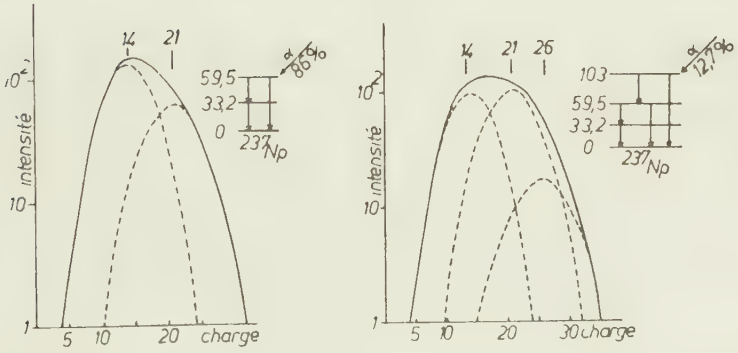
Il faut noter la différence essentielle suivante : les expériences de Perrin et Wieclawik détectent les charges des atomes après la fin de tous les réarrangements électroniques succédant aux évènements nucléaires, tandis que dans nos expériences l'observation des électrons a lieu à un stade précédent :



Carlson , Hunt et Krause [CA(66)]

Fig. IV -27





Charge des atomes de recul de ^{237}Np -(Perrin et Wieclawik)

Fig. IV - 28

par exemple, là où nous observons des électrons après une conversion préalable, les expériences de temps de vol donnent le spectre de chargesd'atomes dont le noyau est revenu à l'état fondamental, une fois achevés tous les réarrangements électroniques successifs aux transitions converties qui ont pu avoir lieu.

IV - B - 3. Observation des électrons émis uniquement par des atomes en vol à la suite du recul α ($^{241}Am \longrightarrow {}^{237}Np$).

L'analyse des résultats obtenus avec les lignes de conversion de ^{223}Ra a montré combien celle-ci était compliquée par la présence de raies Auger dont l'intensité est difficile à connaître avec précision pour le radium et aussi par la présence de raies de conversion faibles superposées dans la queue vers les basses énergies des raies. La bande satellite, tout en étant évidente et nette, donnait lieu, après décomposition en composantes S, D et R, à une incertitude assez grande quant à l'intensité, rendant difficile une comparaison avec des calculs théoriques. Il était clair que le cas idéal serait celui où un spectre de conversion serait assez simple pour qu'il n'y ait pas de raies mélangées, où l'énergie serait telle qu'il n'y ait pas d'interférence de la part de raies Auger, et où enfin la période de l'état excité serait assez grande pour qu'il soit possible, par une canalisation convenable, de masquer la source et de n'observer que les électrons émis par les atomes reculant en dehors de la source.

Un cas favorable est celui du niveau de 59,5 keV de ^{237}Np alimenté par l'émission α de ^{241}Am : la période de 63 ns assure une distance moyenne parcourue dans le vide avant émission de 25 mm (distance parcourue correspondant à une période : 18 mm) et permet de canaliser efficacement les atomes de recul

sortant de la source. Les raies de conversion L et M de ce rayonnement sont bien isolées et situées en dehors des spectres Auger K et L. Enfin, le niveau de 59,5 keV est alimenté pour 14% par le niveau de 103,0 keV par une transition M_1 de 43,5 keV, très convertie, qui provoque l'apparition de bandes satellites dans les raies de conversion des rayonnements issus du niveau de 59,5 keV.

La figure IV-29 donne le schéma des niveaux de basse énergie de ^{237}Np avec les mêmes conventions que celles utilisées fig IV-21 pour le ^{223}Ra, en ce qui concerne les conversions précédées ou non par d'autres conversions. D'après les expériences de Wieclawik [WI (68)] sur ^{241}Am, pour un atome lourd sortant d'un matériau de Z élevé, ce qui est le cas ici (Am_2O_3) , les proportions relatives des charges 0, + 1, + 2 sont approximativement :

$$N(0) / N(+1) / N(+2) = 2 / 7 / 1$$

et pour les atomes où a eu lieu une conversion préalable le maximum de la distribution de charges se situe environ à la charge 14, la largeur à mi-hauteur de la distribution correspondant à 8 charges (fig IV - 28).

Principe de la méthode

Dans les dispositifs que nous avons utilisés (fig II - 6) et fig IV-32), la visibilité directe de la source étant supprimée, nous n'observons que ce que nous avons appelé précédemment la bande S et la raie D. Comme les canaliseurs sont dirigés à angle droit par rapport au faisceau moyen des électrons qui franchissent les deux fentes, une composante de vitesse Doppler soustractive a autant de probabilité qu'une composante additive : on n'a donc plus à proprement parler de raie Doppler, au sens où nous l'avons

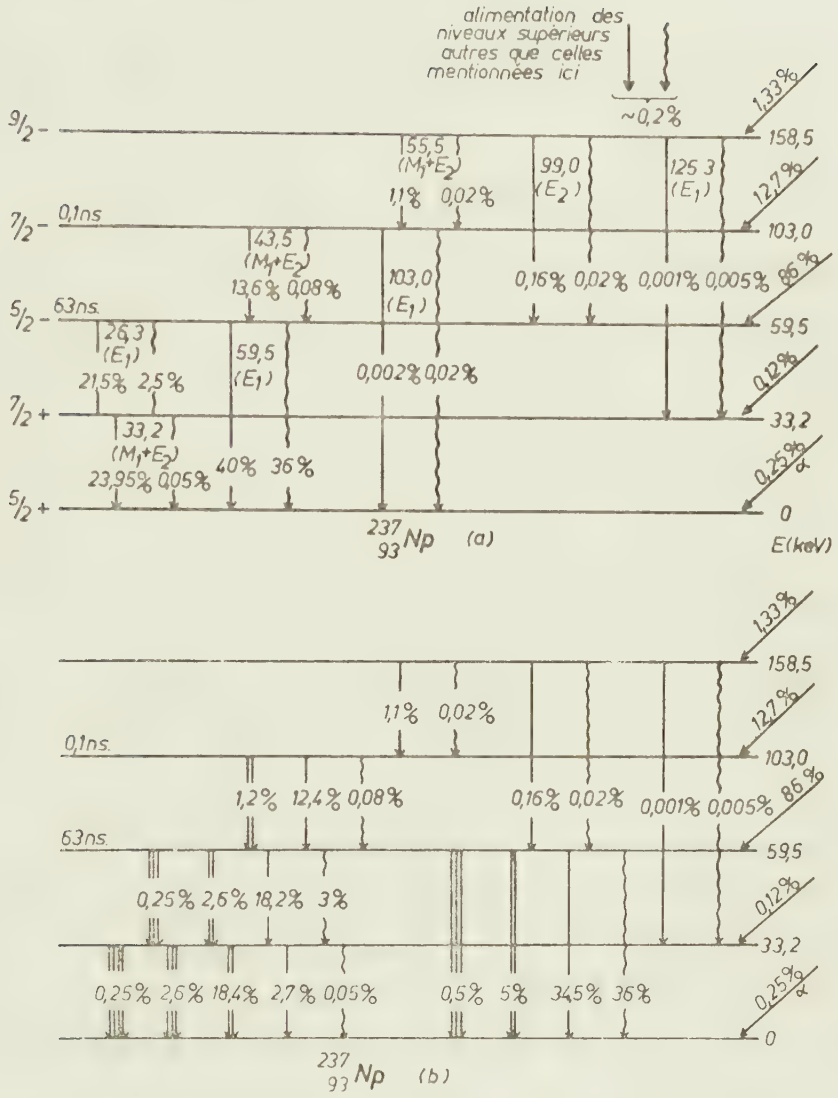

alimentation des niveaux supérieurs autres que celles mentionnées ici
~0,2%
9/2 -
7/2 -
5/2 -
7/2 +
5/2 +
0,1ns
63ns
158,5
103,0
59,5
33,2
0
55,5 (M1+E2)
99,0 (E2)
125,3 (E1)
43,5 (M1+E2)
103,0 (E1)
26,3 (E1)
59,5 (E1)
33,2 (M1+E2)
1,1% 0,02%
13,6% 0,08%
0,16% 0,02% 0,001% 0,005%
21,5% 2,5%
0,002% 0,02%
23,95% 0,05%
40% 36%
1,33%
12,7%
86%
0,12%
0,25% α
237 93 Np (a)
E(keV)
1,2% 12,4% 0,08%
0,25% 2,6% 18,2% 3%
0,25% 2,6% 18,4% 2,7% 0,05%
0,5% 5% 34,5% 36%
237 93 Np (b)

Fig. IV - 29

utilisé jusqu'à présent dans le cas d'une source directe, mais plutôt à une distribution élargie par effet Doppler et dont le maximum se situe à l'énergie même à laquelle s'observerait la raie appelée R précédemment, alors que dans les expériences réalisées avec ^{227}Th, la raie D était déplacée vers les grandes énergies par rapport à R.

La longueur minimum du canaliseur doit être telle que, pour la bande S, la première conversion soit achevée bien avant que l'atome ne pénètre dans l'espace utile. Le niveau concerné (103,0 keV) a une période de l'ordre de 10^{-10} sec (Wolfson et al. [WO (65)]) et les atomes de recul, d'énergie cinétique 108 keV parcourent une distance moyenne de 30μ dans le vide avant désexcitation du niveau de 103 keV. Si la source est épaisse, ce qui a toujours été le cas, cette distance moyenne est comprise entre 0 et 30μ, et au bout de 150μ on peut admettre que la distribution de charge des atomes de recul est établie avec des proportions correspondant au schéma de la figure IV -29 .

Le principe de la méthode a été donné chapître II § I - 2 - C. Le mode d'enregistrement étant photographique, avec les défauts et les avantages exposés précédemment, les rapports d'intensité entre lignes doivent faire l'objet de corrections. Mais le but de ces recherches concernant les profils de lignes, sur toute l'étendue de l'une de celles-ci, on peut considérer une telle correction comme constante avec une bonne approximation. Un calcul élémentaire d'angles solides montre que les temps de pose sont très grands si on veut obtenir la ligne avec une densité photographique suffisante sur la queue basse énergie des raies. Après quelques essais, le temps de pose adopté pour chaque expérience a été de deux mois, sauf pour les poses de contrôle des intensités relatives des lignes de conversion effectuées avec des sources directes et où ont été mesurées les conversions

$L_1L_2L_3$, $M_1M_2M_3M_4M_5$, $N_1N_2N_3$, O et P. Par suite de l'accord général de ces mesures avec celles de Lederer et al. [LE (66)] et Yamazaki et al. [YA (66)], nous laisserons de côté ici ces résultats.

Ce temps de pose est établi pour une source assez épaisse d'Am_2O_3 et montre que ce dispositif ne peut être utilisé avec une source mince ($\sim 1 \mu g/cm^2$) car les temps de pose, dans ce cas, excéderaient en durée une année.

Préparation des sources

Les évaluations numériques, confirmées par les premières expériences, ayant montré que les sources doivent être épaisses mais homogènes, nous avons exclu tout procédé de dépôt chimique ou électrolytique pour utiliser de préférence des couches d'oxyde volatilisé sur des plaques d'or. De telles sources sont très stables et inaltérables, même à l'air. Les épaisseurs sont évaluées à partir de la couleur d'interférence : la couleur de l'or recouvert d'une couche de l'ordre de $\sim 10 \mu g/cm^2$ est à la limite du virage brun - jaune citron et permet de suivre l'opération à travers le verre de la cloche à vide. La dernière expérience décrite ici a été faite avec deux plaques de 20 x 30 mm recouvertes sur une face par environ 100 μg d'Am_2O_3. La volatilisation utilise à peu près la quantité double : 200 μg qui sont déposés, sous forme de goutelettes de 1 mm^3 de solution nitrique de $Am(NO_3)_3$ sur une lame de tantale avec des points creux. Cette lame est séchée puis chauffée sous vide à 1300° pour nettoyer l'américium, puis, devant les plaques d'or, chauffée à 1700°. La volatilisation du produit peut être suivie à l'oeil, les quantités étant macroscopiques.

Premières expériences sans discrimination des charges.

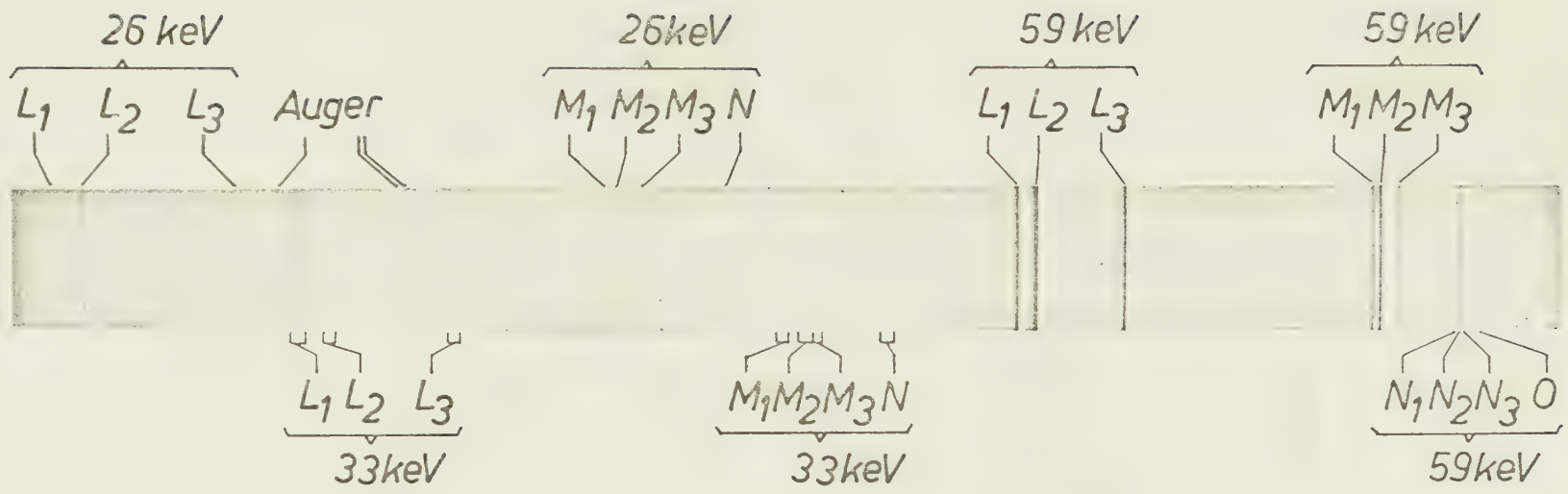
Les premiers résultats ont été obtenus avec un dispositif du type représenté figure II - 6 avec ou sans pré-accélération , la canalisation des reculs étant réalisée par des volets. L'existence des bandes satellites ressortait très clairement pour les

transitions de 59,5 et 26,3 keV qui ont même alimentation, tandis que les raies de conversion du rayonnement de 33,2 keV montraient une prédominance très forte de bande satellite. La figure IV-29 indique en effet que l'alimentation ionisante est très élevée dans ce cas. Ces premières observations sont reproduites sur le cliché de la figure IV- 30 et les densitogrammes correspondant sur la figure IV-31 (les courbes représentant les raies des rayonnements de 26,3 et 33,2 keV ont été obtenues par sommation de plusieurs passages au densitomètre de manière à intégrer l'information sur toute la largeur du film).

Ainsi, de même que dans les expériences de coïncidences α-e^- de Gelletly et Geiger, on s'affranchit, grâce à ce dispositif, de la présence gênante de la raie R, qui rendait difficile une interprétation quantitative précise.

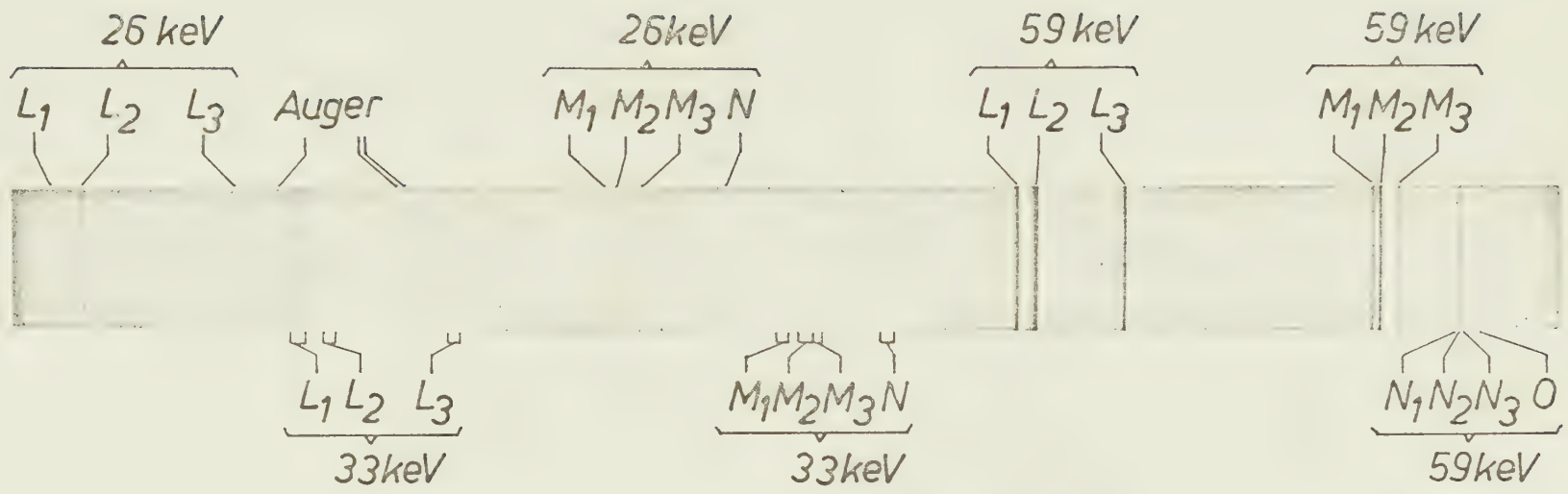
Les essais d'analyse de ces profils ont donné lieu à des difficultés sérieuses quant au rapport bande satellite/bande Doppler (S/D, même signification que dans le paragraphe C - 1, raie R absente). La méthode consistait à adopter pour la raie D, Doppler normale, un profil expérimental obtenu au moyen d'une raie de forme symétrique convoluée par la raie de résolution calculée pour une raie monocinétique. La raie symétrique était déterminée par essais successifs convergents jusqu'à ce que le côté haute énergie du profil global coïncide avec le résultat de la convolution.

Une telle analyse a fourni des rapports S/D ne correspondant pas à ceux déduits du schéma de la figure IV - 29 : rapports trop élevés d'un facteur 1,5 à 2 pour les raies de conversion L_1, L_2, L_3 de 59,5 keV et trop faibles pour le rayonnement de 33,2 keV. Parmi plusieurs hypothèses dont la possibilité d'une variation de période qui pourrait être différente pour un rayonnement E_1 très interdit et un rayonnement $M_1 + E_2$, nous avons



$^{241}Am \longrightarrow {}^{237}Np$

Fig. IV-30



$^{241}Am \longrightarrow {}^{237}Np$

Fig. IV-30

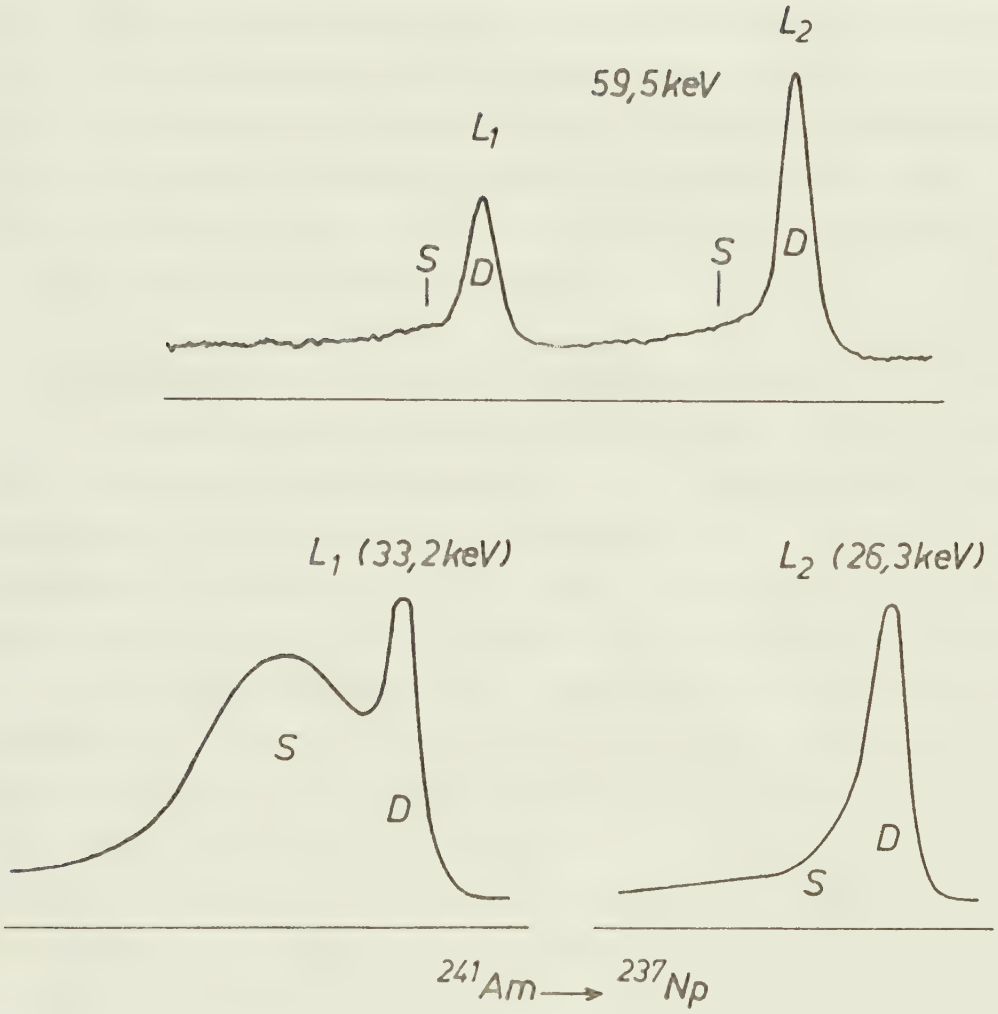


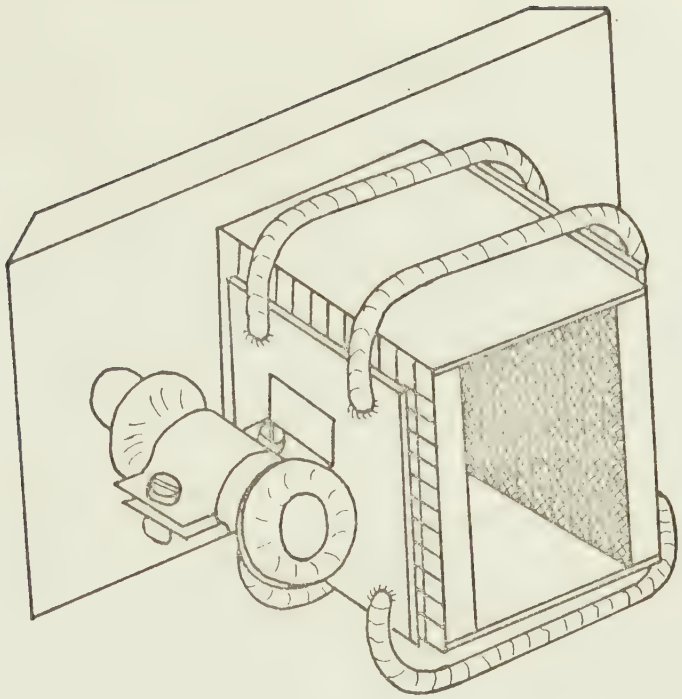
Fig. IV - 31

retenu qu'avant tout une canalisation plus rigoureuse des noyaux de reculs était nécessaire, pour qu'aucune surface secondaire "visible" à travers les deux fentes ne puisse recevoir les atomes de recul, car ceci superposerait une raie R, accompagnée d'une queue résultant de l'absorption superficielle, à la somme des raies D + S, en faussant le rapport S/D. Par ailleurs il apparaissait intéressant de trouver un moyen permettant de distinguer les atomes de recul très chargés de ceux peu chargés, de façon à déterminer expérimentalement la raie S sans faire intervenir des hypothèses à priori sur la forme de la raie D.

Expérience avec discrimination des charges

Le dispositif adopté, auquel ont conduit des améliorations successives est présenté sur la figure IV.32 . L'oxyde d'américium est déposé sur des plaques d'or isolées électriquement et pouvant être mises sous tension. Le canaliseur est à grande transmission (85%) et se compose de cellules de section carrée 3 x 3 mm^2 et de longueur 3 mm. Un grillage très fin recouvre l'ouverture de ce canaliseur et a pour rôle d'empêcher la pénétration du champ électrique dans l'espace utile, c'est-à-dire celui d'où les électrons émis par les atomes de recul peuvent franchir les deux fentes de définition du faisceau (*). Par précaution, les ensembles canaliseurs ont été écartés plus que ne l'indiquait une construction graphique pour qu'à toutes les énergies utiles aucun électron partant d'un des grillages ou de l'un des éléments de l'ensemble source ne puisse franchir la deuxième fente de définition. En effet, toute surface qui est visible à la fois par la source et à travers les deux fentes est génératrice d'une contribution à la ligne de conversion d'électrons émis par les atomes ayant reculé dans cette surface. Une telle ligne possèderait donc une queue, dûe au ralentissement, qui,

(*) Je remercie beaucoup Monsieur Legrand qui, par traçage des lignes du champ à la cuve électrolytique, a déterminé le type de grillage qui assure la neutralité électrique de l'espace utile.



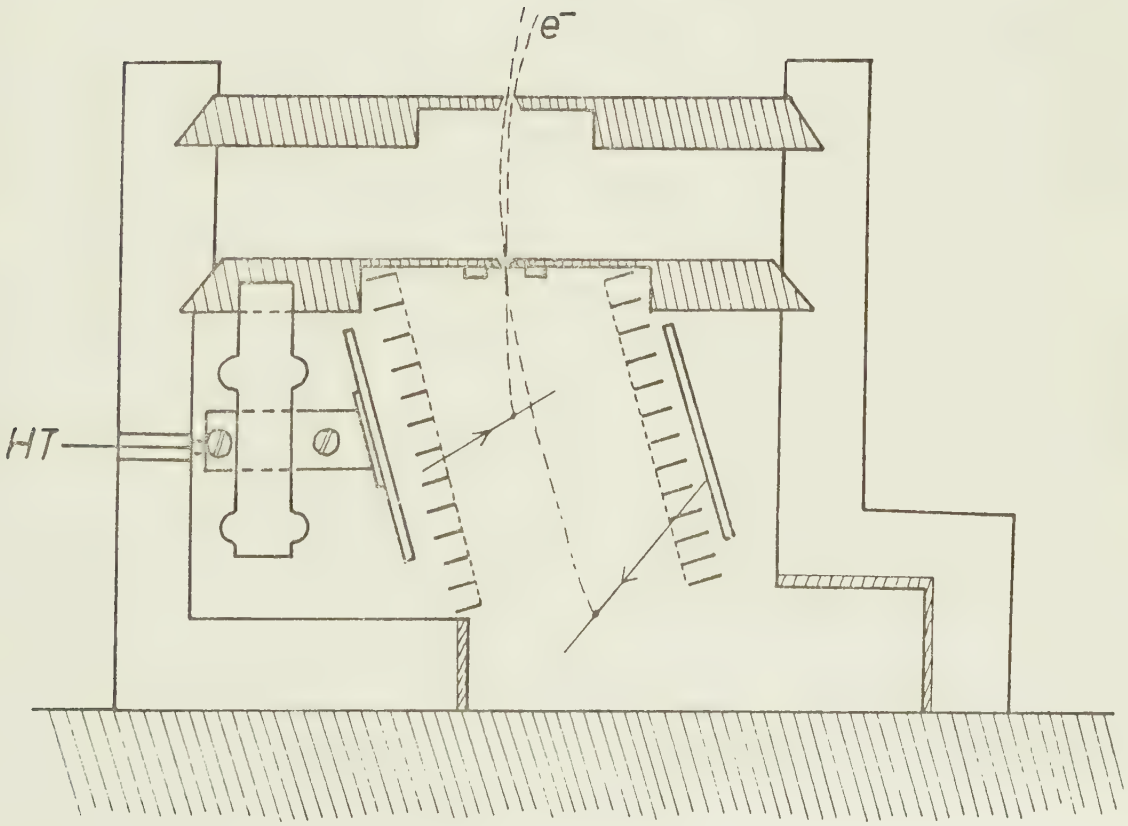


Fig. IV - 32

pour ces énergies, aurait une extension importante et déformerait la bande satellite d'une façon impossible à calculer.

Sans tension appliquée à la source, on observe les électrons des reculs de toutes charges et de toutes les vitesses, c'est-à-dire les bandes D + S. Avec tension appliquée à la source, un certain nombre de charges sont supprimées, d'autres passent faiblement, car, la source étant épaisse, les reculs sortent de cette couche avec un spectre d'énergie à peu près rectangulaire, si l'on admet approximativement pour le parcours de ceux-ci $R = C^{te}.E$ (voir par exemple Harvey [HA (60)]). Si la tension est suffisante, on peut supprimer la presque totalité des atomes dont la forte charge est provoquée par une première conversion. La raie observée est donc la raie D seule et par soustraction, on peut ainsi obtenir la contribution de la bande satellite S.

Comme nous l'avons dit, la bande Doppler est élargie symétriquement par rapport à l'énergie normale de la raie de conversion car les vitesses de recul sont distribuées symétriquement par rapport à une direction perpendiculaire à celle des électrons qui franchiront les deux fentes. On s'affranchit ainsi partiellement d'une connaissance très exacte du spectre de vitesses des atomes de recul, comme nous le verrons dans le § C - 4 . D'autre part, un certain effet défocalisant est à attendre de la part du canaliseur avec tension appliquée à la source, mais ceci affecte essentiellement les charges élevées et moins les charges 1 et 2. Néanmoins, une normalisation expérimentale est nécessaire entre les deux expériences, car l'application de la tension diminue la vitesse des atomes de recul de charge faible et influence l'intensité observée des raies qui, pour chaque vitesse et chaque direction, varie comme $\lambda v^{-1} \exp(-\lambda l v^{-1}) dl$ où l est la distance à parcourir entre la source et la zone utile (c'est-à-dire celle d'où les électrons émis peuvent franchir les deux fentes) et dl

l'extension de cette zone très petite. Le spectre de vitesses n'étant pas connu avec précision, il n'est pas possible d'intégrer cette expression simple. Nous avons néanmoins vérifié que l'intégration dans le cas très simplifié d'un parcours constant et d'une distribution rectangulaire en énergie suivie d'une convolution par la fonction de résolution, donne un profil très semblable à celui observé, et ce profil est peu sensible aux hypothèses introduites quant au parcours.

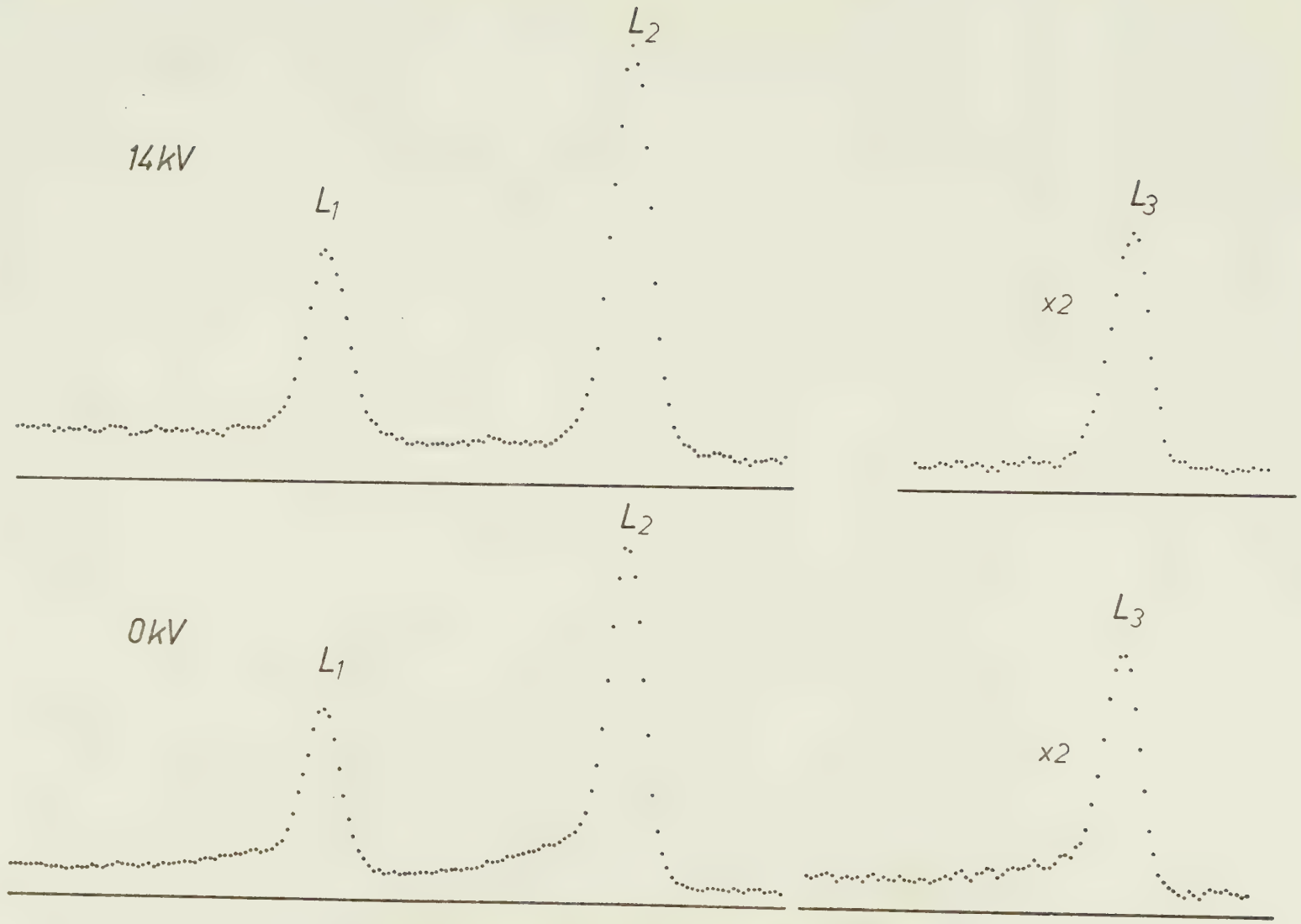
Résultats expérimentaux

Au moment de cette expérience, les distributions de charges observées par Wieclawik et Perrin étaient connues. Dans le groupe des charges élevées, la charge la plus faible d'influence encore notable est 5. Les atomes de recul ayant une énergie maximum de 108 keV, une tension appliquée à la source de 21 à 22 kV était en principe nécessaire pour la suppression totale des charges élevées. Pratiquement, nous avons utilisé une tension de 14 kV, ceci impliquant déjà des gradients locaux sur le canaliseur de l'ordre de 300 kV/cm. Néanmoins une telle tension est acceptable, comme le montre le tableau IV - f qui suppose une distribution rectangulaire du spectre d'énergie, et qui tient compte du spectre de charges de Wieclawik [WI (68)] .

Tableau IV - f

rge	% du total des charges élevées.	% transmis du groupe pour 14 kV appliqués	% transmis du total des charges élevées	énergie résiduelle maximum
	0,25 ± 0,15	35	0,09	38 keV
	0,6 ± 0,25	20	0,12	20 keV
	1,5 ± 0,3	7	0,10	10 keV

Vis à vis de la précision expérimentale, cette transparence de 0,3% est négligeable, d'autant plus qu'il s'agit de charges assez



Rayonnement de 59,5keV (^{237}Np)

Fig. IV - 33

faibles dont la contribution à la bande satellite se situe très près, sinon dans la raie Doppler normale, et contribuent à celle-ci pour 0,05% au plus. La figure IV - 33 montre le dépouillement numérique des densitogrammes des raies du rayonnement de 59,5 keV, pour deux expériences sans et avec tension retardatrice, obtenues en 5 mois de pose.

Analyse des résultats

L'analyse des raies a été moins simple que prévue, car le canaliseur possède des propriétés optiques divergentes vis à vis des ions lorsque la tension est appliquée à la source (fig IV - 34).

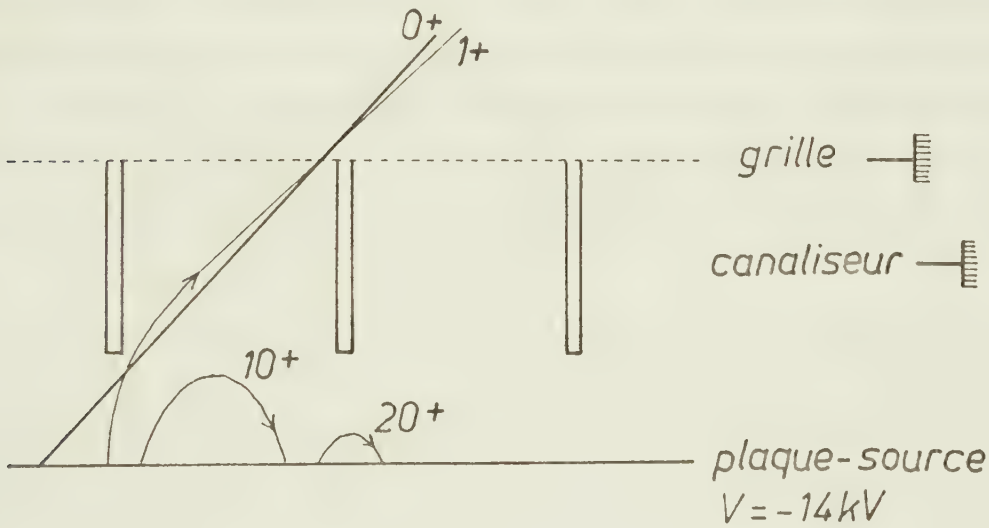


Fig. IV - 34

Les poses avec et sans tension ont donné en effet, à temps de pose égal, des intensités intégrées sur la ligne des faibles charges dans le rapport $I_{14\ kV}/I_{0\ kV} = 0,72$. Comme la contribution

des atomes neutres reste la même, nous avons déduit de là, moyennant l'hypothèse raisonnable que le spectre d'énergie des atomes de reculs est rectangulaire, que la composition des reculs faiblement chargés s'établit de la façon suivante :

	0	1+	2+
tension source 0 kV	1	3,5	0,5
" " 14 kV	1	2,3	0,25

La disparition de 30% des charges 1 et de 50% des charges 2 indique bien l'augmentation de la divergence angulaire du faisceau sortant du canaliseur, en fonction de la charge et de la tension appliquée. Ceci conduit à des profils de raie D différents avec et sans tension, il n'est donc pas possible de soustraire simplement une courbe de l'autre. La procédure, assez longue, pour obtenir la différence significative s'appuie sur les considérations suivantes :

- Dans le paragraphe suivant (§ C - 4), nous donnons les détails d'un calcul de bandes satellites. Ce calcul montre qu'à l'emplacement du maximum de la raie, l'intensité de la bande satellite est très faible ($< 0,5\%$ de la raie). On peut donc admettre que le profil de la moitié de la raie, du côté des grandes énergies, est pur et indépendant de la bande S.

- Le dispositif source (fig IV- 32) a été analysé par un traçage à la cuve électrolytique qui a indiqué que de faibles résidus de champ électrique subsistent en certains endroits de l'extrémité du dispositif source.

La contribution en intensité ayant été calculée graphiquement pour chaque volume, une faible correction a été obtenue

sous forme d'une fonction de distribution donnant l'intensité en fonction de l'accélération supplémentaire des électrons. La correction reste faible :

$$\mathcal{J}(0) = 0{,}9,\ \mathcal{J}(10^{-3}) = 0{,}07,\ \mathcal{J}(2.\ 10^{-3}) = 0{,}015$$

où la variable est $\frac{\Delta(E)}{E}$, E étant l'énergie d'accélération maximum possible : 14 keV.

Le procédé employé est alors le suivant :

a) On calcule le profil de raie que donnerait le spectrographe pour une ligne monocinétique et pour les conditions réelles de dépouillement : densitomètre avec fente de 4 mm de hauteur, dépouillement sur 6 bandes de façon à utiliser l'information contenue dans 24 mm de largeur de cliché, addition de ces 6 bandes en ajustant au mieux les sommets les uns sur les autres pour compenser la courbure de la raie dans le plan du spectrographe. La fonction de résolution obtenue est notée R (x).

b) La fonction de correction électrostatique est notée $\mathcal{J}(x)$, l'échelle d'énergie ayant été transformée en échelle d'abscisses dans le plan focal.

c) Les courbes expérimentales $I_0(x)$ et $I_{14}(x)$ (sans et avec tension) se partagent d'après ce qui a été dit plus haut, en deux portions : en ajustant les sommets sur x = 0, lors de la transformation des densitogrammes individuels en fonctions numériques aux fins d'addition, on a : pour $x > 0$, la portion de courbe située entre le sommet et les grandes énergies (ou tête de raie) indépendante de la bande satellite et la portion $x < 0$ qui contient le reste de la raie plus la bande satellite.

d) On note C(x) la distribution de vitesses transformée en distribution par abscisse dont la convolution par la fonction de résolution, corrigée des résidus électrostatiques, doit

redonner le profil de raie. Dans ces conditions :

$$R_0(x) \otimes C_0(x) = I_0(x) \qquad \text{pour } x > 0$$

$$R_{14}(x) \otimes \mathcal{J}(x) \otimes C_{14}(x) = I_{14}(x) \qquad \text{pour } x > 0$$

avec la condition de normalisation $\int_0^{+\infty} I_0(x)\,dx = \int_0^{+\infty} I_{14}(x)\,dx$

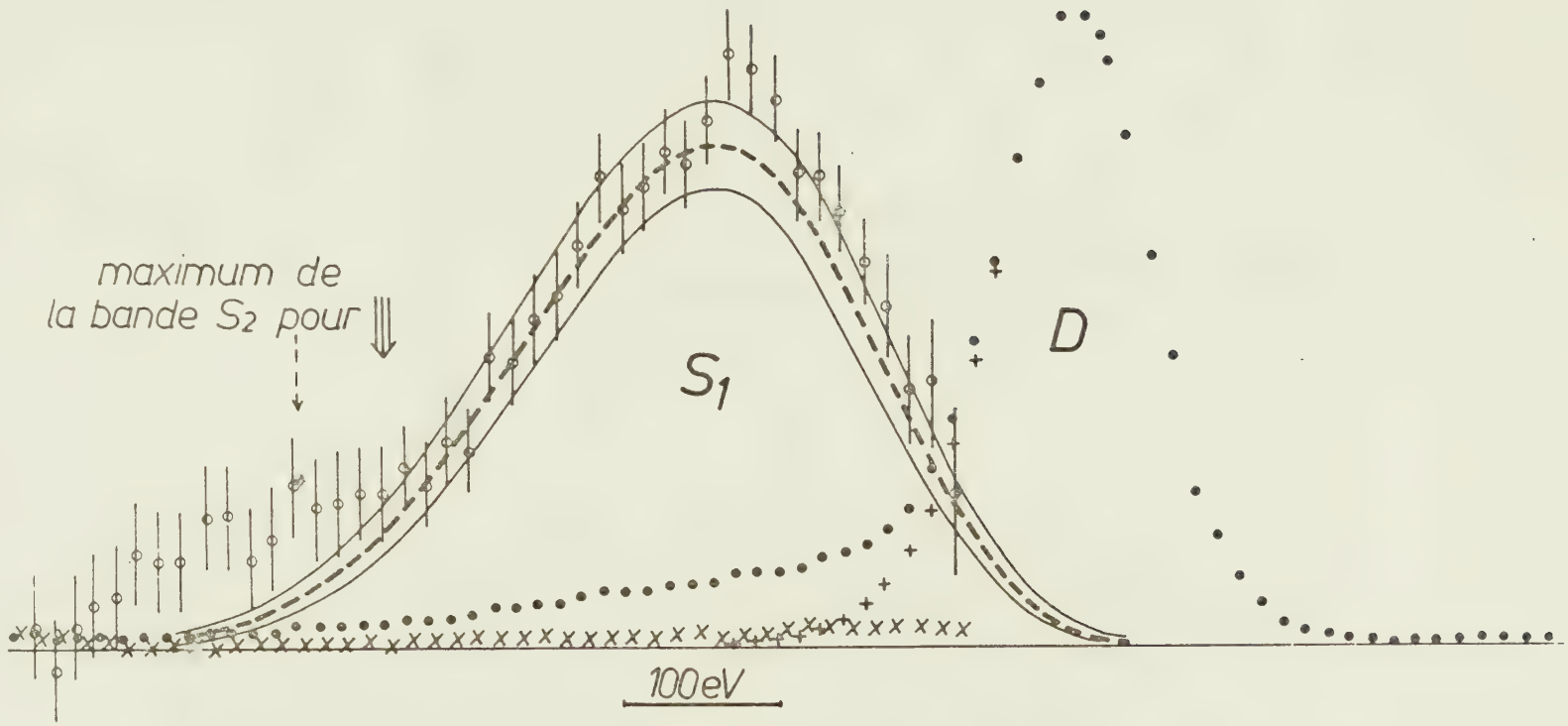
Les fonctions $C_0(x)$ et $C_{14}(x)$ sont déterminées par essais convergents. La courbe $I_{14}(x < 0)$ ne se superpose pas exactement à $R_{14}(x) \otimes \mathcal{J}(x) \otimes C_{14}(x)$, car elle contient, dans sa descente vers les basses énergies, des résidus dûs aux charges 5 et 6 qui ont passé le canaliseur, ainsi que divers petits effets parasites. Nous avons donc pris comme différence représentative de la bande satellite la quantité

$$S(x) = (I_0 - R_0 \otimes C_0) - (I_{14} - R_{14} \otimes \mathcal{J}_{14} \otimes C_{14})$$

C'est cette différence qui est représentée figure IV- 35 avec la barre d'erreur générale qui résulte des défauts de la méthode photographique (inhomogénéité du voile chimique de l'émulsion, fluctuations entre les six densitogrammes dont l'addition donne les courbes I_0 et I_{14}, etc...). Sur cette figure est portée aussi la courbe théorique avec ses marges d'incertitude, calculée au § C - 4.

Les résultats qui concernent les raies L_1 et L_3, de valeur statistique moindre, n'ont pas été analysés d'une façon complète. Pour montrer qu'il y a néanmoins un accord général satisfaisant, la figure IV-36 montre, superposées, les trois raies normalisées, observées dans l'expérience sans tension. Les bandes satellites sont, aux erreurs expérimentales près, de même importance vis à vis de la raie Doppler.

• points expérimentaux 0 KV
+ queue basse énergie de la raie D (0 KV) calculée
× résidu des points expérimentaux à 14 KV après soustraction de la queue calculée de la raie D (14kV)
ϕ différence des courbes (••••)−(++++)−(××××) amplifiée 10 fois
--- courbe théorique avec son incertitude (----)



Conversion L_{II} de la transition de 59,5 keV ($^{237}_{93}Np$)

(1er calcul - § B - 1 -)

Fig. IV - 35

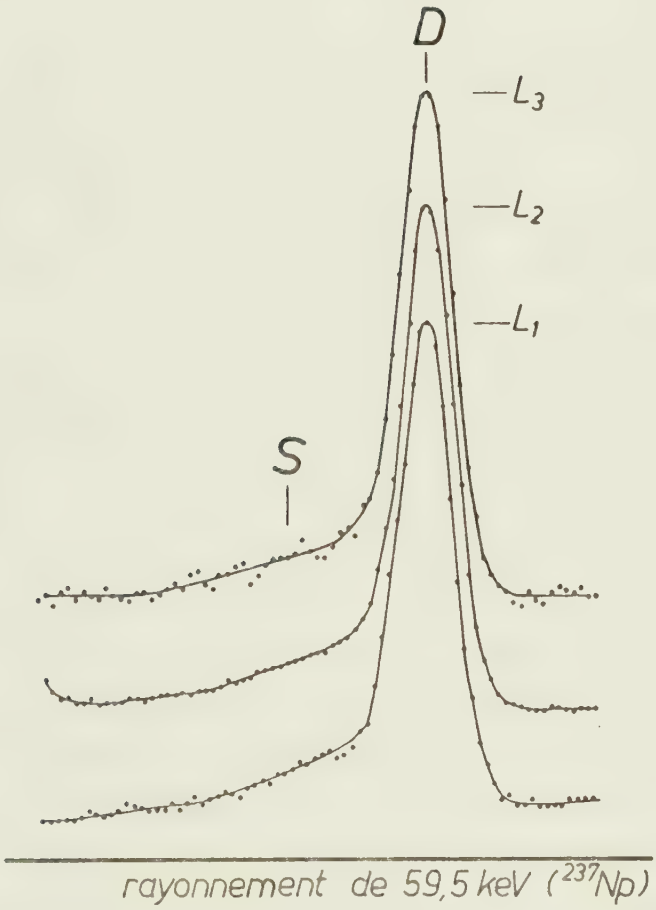


Fig. IV - 36

IV - B - 4. Comparaison des résultats expérimentaux avec des calculs d'énergies de liaison dans des atomes ionisés (calculs H.F.S. relativistes).

a - Calculs d'énergies de liaison dans des atomes ionisés

Afin de pouvoir vérifier la validité des hypothèses que nous avons avancées précédemment et procéder à une comparaison entre nos observations et des prévisions théoriques, une connaissance exacte des déplacements en énergie des niveaux électroniques en fonction de la charge de l'atome s'est avérée indispensable.

En première approximation on peut prévoir, en prenant une image simplifiée de la charge électronique répartie sur des sphères concentriques, que les énergies de liaison dans un atome ionisé sont plus grandes que celles dans l'atome neutre, et que cet accroissement n'est pas très différent pour les couches occupées K, L, M... de l'atome ionisé.

Au cours de ce travail, parmi les publications parues sur de tels calculs d'énergie de liaison, nous citerons les calculs de Watson et Rasmussen [WA (66), WA (67)] effectués pour un domaine de variation de Z ($38 < Z < 62$) le plus proche de celui qui nous concerne ici. Watson et Rasmussen ont en effet étudié les spectres γ et de conversion émis par les fragments de la fission de ^{252}Cf. Par suite de leur très grande vitesse ($\sim 10^9$ cm/s), ces fragments sont très ionisés au sortir de la matière formant la source (des charges de l'ordre de 24 sont couramment atteintes).

Ces auteurs ont calculé les énergies de liaison K et L pour les atomes Sr, Pd, Xe et Sm pour un certain nombre d'états de charge allant jusqu'à 44, par une méthode de champ self-consistant Hartree-Fock, (calculs non relativistes), utilisant un développement LCAO (combinaisons linéaires des orbitales

atomiques) [RO (60)] , et en prenant pour fonctions radiales de base des fonctions normalisées de Släter de la forme :

$$R_{\lambda_p}(r) = \left[(2n_{\lambda_p})!\right]^{-1/2} (2\xi_{\lambda_p})^{n_{\lambda_p}+1/2} \, r^{n_{\lambda_p}-1} \, e^{-\xi_{\lambda_p} r}$$

Les fonctions de base sont optimisées par variation des exposants ξ_{λ_p} des orbitales de Släter de façon à minimiser l'énergie totale par une méthode selft-consistante.

Ces calculs, n'étant pas relativistes, sont entachés d'une certaine erreur et une correction linéaire a été appliquée à toutes les énergies de liaison K calculées, de manière que les deux états extrêmes:atome neutre et atome ne conservant plus qu'un seul électron,soient en accord avec d'une part les valeurs données par Hagström et al. [HA (65)] pour l'atome neutre,et d'autre part avec la formule de Sommerfeld avec correction relativiste, pour l'atome "mono-électronique" (N = Z - 1).

Ainsi en utilisant les calculs d'énergie de liaison des atomes cités ci-dessus, Watson et Rasmussen ont déterminé une formule empirique pour calculer les énergies de liaison K pour des atomes de Z = 34 à Z = 66 en fonction de l'état de charge :

$$E_{ion} = E_{neut.} \left[1 + f\left(\frac{N}{Z}\right) e^{-aZ} \right]$$

où N est la charge de l'ion
et $a = 1{,}8484 \times 10^{-2}$ est une constante empirique.

La fonction $f(\frac{N}{Z})$ est un polynôme du 7ème degré en $(\frac{N}{Z})^{3/2}$:

$$f\left(\frac{N}{Z}\right) = \sum_{k=1}^{7} C_k \left[\left(\frac{N}{Z}\right)^{3/2} \right]^k$$

Avec l'ensemble des sept paramètres C, toutes les énergies calculées par Watson et Rasmussen sont reproduites

avec un écart maximum de $\pm$ 0,04 keV. Nous reviendrons dans le paragraphe suivant sur cette relation, quand nous calculerons les énergies de liaison pour l'atome de neptunium à partir de celles calculées pour le radium, nous pourrons valablement appliquer cette relation pour un petit domaine de variation de Z.

L'extrapolation des calculs non relativistes de Watson et Rasmussen à des atomes très lourds, étant trop approximative, le problème ne pouvait se résoudre que par des calculs relativistes pour la région de Z = 88 à 93.

Monsieur le Professeur Daudel, Directeur du Centre de Mécanique Ondulatoire Appliquée, a bien voulu s'intéresser à ce problème, et nous tenons à le remercier ici bien vivement. C'est grâce à l'obligeance de Madame N. Bessis, que, sur un programme mis au point avec M. Desclaux, ont pu être calculées les énergies de liaison des différentes couches pour l'atome neutre, et pour l'atome dans des états d'ionisation allant jusqu'à 28 charges.

Les calculs ont été effectués pour l'atome de radium* : atome neutre et atome dans différents états de charge, par une méthode Hartree-Fock en prenant comme fonctions d'onde de départ des orbitales hydrogénoïdes. Le processus de calcul est alors celui cité plus haut, en introduisant l'approximation de Släter pour les intégrales d'échange, c'est-à-dire, en remplaçant les termes d'échange par un potentiel moyen de la forme :

$$V_S = -1,5\ e^2 \left[\frac{3\rho}{\pi}\right]^{1/3}$$ où ρ est la densité d'électrons.

Etant donnée la valeur élevée de Z, les premiers calculs non relativistes effectués se sont révélés insuffisants, et les calculs qui ont servi à la comparaison avec l'expérience (§ C-4-B)

* Des calculs tout à fait récents de Mme N. Bessis [BE (69)] pour l'atome de neptunium viennent de nous permettre d'effectuer une deuxième comparaison théorie-expérience que nous avons ajoutée au § C - 4 (B-2).

ont été faits en introduisant des spin-orbitales à quatre composantes de la théorie de Dirac, pour tenir compte des effets relativistes.

Sur la figure IV-37 sont portées les variations d'énergie de liaison $\Delta E_N = E_{ion} - E_{neut.} = f(n,N)$ pour les états de charge 10+, 20+, 28+ et pour les différentes couches électroniques du radium (en réalité nous avons représenté la quantité $\Delta E_N . N^{-7/4}$ pour faciliter la représentation simultanée des variations d'énergie pour différents états de charge ; toujours pour des facilités de représentation les points correspondant à chaque valeur du nombre quantique n ont été reliés par une courbe continue).

Comme nous l'avons dit au début de ce paragraphe, les variations ΔE_N d'énergie de liaison ne sont que peu différentes d'une couche à l'autre pour des charges moyennes, légèrement décroissantes de la couche K aux couches O. C'est ce que montre la figure IV - 38 qui représente ΔE_N = 10+ en fonction du nombre quantique n : pour la charge 10+, on passe de ΔE_{10+} = 142 eV pour la couche K à ΔE_{10+} = 138 eV pour la couche N.

Comme les variations d'énergie dépendent essentiellement de N, et beaucoup moins des nombres quantiques n, ℓ et j, nous représentons sur la figure IV - 39 la variation de $\overline{\Delta E_N}$ pour les couches L en fonction de N, la courbe en pointillés représentant le calcul non relativiste, et le trait plein le calcul relativiste, pour les charges 10, 20 et 28. Dans le domaine de charges qui nous intéresse, c'est sur la base de cette dernière courbe, que nous avons utilisé dans le paragraphe suivant une forme très simplifiée de ΔE fonction de N à la place de la formule complexe de Watson et Rasmussen.

b - Comparaison théorie - expérience

1 - Sur la figure IV - 35 sont reproduites d'une part la bande satellite expérimentale, et d'autre part la bande satellite calculée. Les incertitudes sur les fonds à déduire des raies, sur

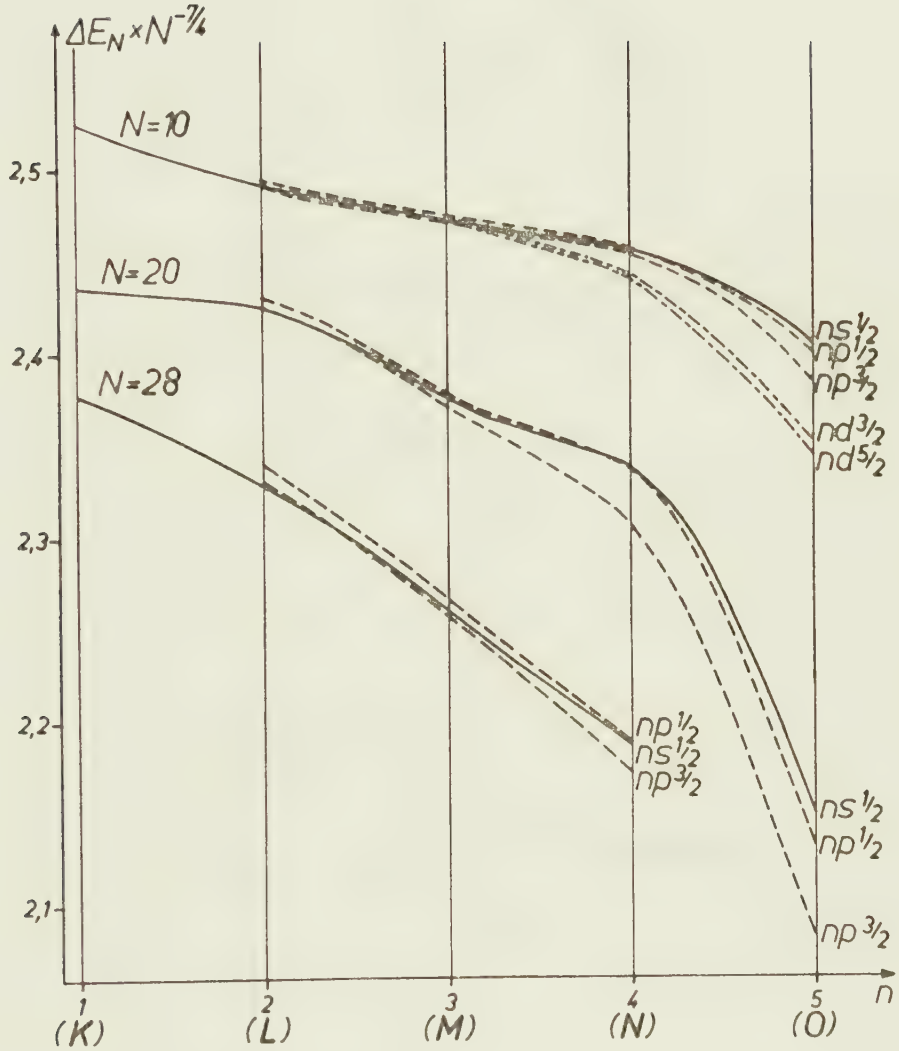

$\Delta E_N \times N^{-7/4}$
N=10
N=20
N=28
2,5
2,4
2,3
2,2
2,1
$ns^{1/2}$
$np^{1/2}$
$np^{3/2}$
$nd^{3/2}$
$nd^{5/2}$
$np^{1/2}$
$ns^{1/2}$
$np^{3/2}$
$ns^{1/2}$
$np^{1/2}$
$np^{3/2}$
1 (K)
2 (L)
3 (M)
4 (N)
5 (O)
n

Fig. IV - 37

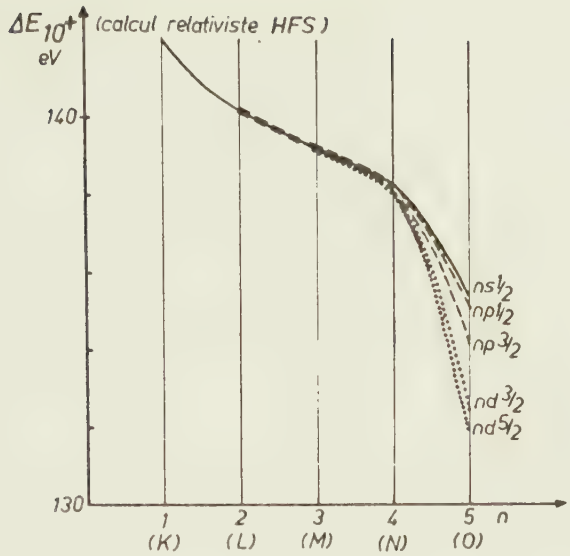


Fig. IV - 38

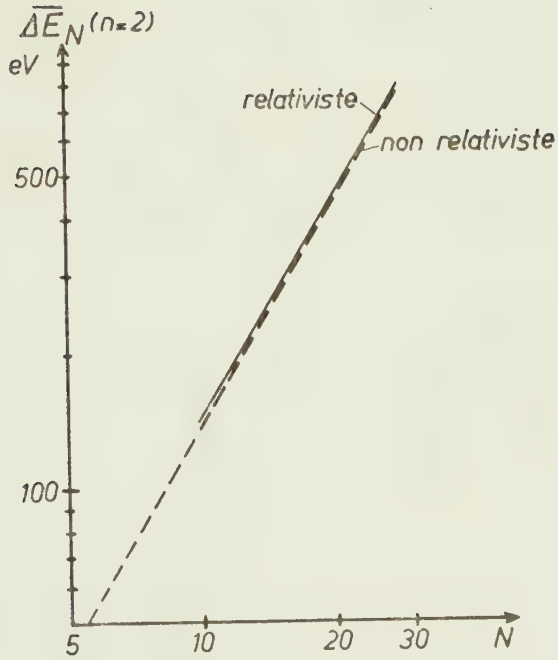


Fig. IV - 39

la forme des raies analysées et celles dûes aux fluctuations d'efficacité de l'émulsion ont donné lieu à une estimation générale de l'incertitude représentée par les barres d'erreur.

La bande satellite calculée l'a été sur les bases suivantes, qui demandent à être explicitées afin qu'il soit clair que de ce côté, et dans l'état actuel des connaissances, l'imprécision conduit aussi à représenter ce calcul par une zone d'incertitude :

- les probabilités relatives des différents états de charge sont prises dans les travaux de Wieclawik et Perrin [WI (68)] . Les probabilités que nous avons adoptées sont les suivantes :

charge	5	6	7	8	9	10	11	12	13	14	15	16	17	18	19	20	21	22	23	24
bba.rel.	0,3	0,7	1,5	2,6	4,4	6,5	8,7	11,2	12,7	13	12,7	11,1	9,5	7,2	5	3	1,7	0,95	0,4	0,17
rreur %	60	40	20	10	10	10	10	10	10	10	10	10	10	10	10	15	15	20	30	50

Ces erreurs d'intensité proviennent essentiellement de ce que l'observation de ces auteurs porte sur un mélange de deux contributions : évènements avec une conversion préalable et avec deux conversions préalables. La courbe globale doit donc être décomposée suivant certaines hypothèses, comme le montre la figure IV - 28 .

- Les déplacements en énergie ont été calculés par une méthode assez approximative mais suffisamment précise en présence de l'ensemble des erreurs. Le point de départ a été l'ensemble des énergies calculées par Mme Bessis pour les états de charge 10, 20 et 28 pour l'atome Ra. Par ailleurs, Watson et Rasmussen [WA (66), WA (67)] donnent, pour les Z plus bas, une formule générale de variation des énergies des états ionisés :

$E_N = E_o\ (1 + f(\frac{N}{Z})\ e^{-aZ})$ où N est l'état de charge de l'atome, Z la charge du noyau et a une constante : $a = + 0{,}0185$

La fonction $f(\frac{N}{Z})$ est donnée par Watson et al. sous forme d'un polynôme assez compliqué. Nous avons trouvé que pour les états de charges qui nous intéressent ici (de 6 à 24) on a avec une approximation satisfaisante

$\Delta E_N = E_N - E_o = kN^b$ avec $b = 1{,}69$*

Par ailleurs, dans la région des Z élevés, on a approximativement sur un intervalle restreint, $E_L \sim Z^{2,4}$ (on aurait aussi pu utiliser la formule complète de Sommerfeld avec les corrections relativistes indispensables dans les corps lourds).

En remplaçant ainsi $f(\frac{N}{Z})$ par $C^{te}.(\frac{N}{Z})^{1,69}$ et E_o par $C^{te}.Z^{2,4}$ on trouve ainsi

$$\Delta E_N = K.N^{1,69}.e^{-0,0185\ Z}.\ Z^{0,71}$$

Appliqué au cas présent, ceci donne :

$$\frac{\Delta E_N\ (Z = 88)}{\Delta E_N\ (Z = 93)} = 1{,}055$$

Les variations d'énergie pour le neptunium ont donc été prises numériquement égales à :

$\Delta E_N = (\frac{N}{28})^{1,69}.\ 754{,}5$ eV, la constante 754,5 provenant de l'énergie ΔE_{28} moyenne des niveaux L obtenue pour le radium (charge 28) par le calcul relativiste HFS : $\Delta E_{28}(L_I) = 794{,}2$

$\Delta E_{28}(L_{II}) = 798{,}1$

$\Delta E_{28}(L_{III}) = 794{,}7$

es calculs de Watson et al. sont non relativistes et pour des Z bien plus as. On retrouve pour les atomes chargés une variation d'énergie de même ype si on exclue les charges faibles et les charges très élevées. En remière approximation ceci nous fait admettre $b(Z) = C^{te}$ dans la région e Z et n qui concerne nos expériences.

et corrigées du facteur 0,95 relatif à la variation de Z entre Ra et Np. Pour le tracé de la courbe, n a été considéré comme variable continue, c'est-à-dire que chaque point est affecté d'un poids $(\frac{df}{dN})^{-1} = Z^{-0,69}$.

- La courbe théorique a été normalisée à une intensité de 1/6 de la raie D, cette valeur découlant du schéma de la figure IV - 29 si rien ne vient altérer le coëfficient de conversion en fonction de la charge. Il faut noter que la courbe a été calculée pour le cas simple d'une distribution de charges résultant d'une seule conversion préalable. En fait, il y a une contribution de 10 % de double conversion préalable, et ce phénomène doit donner lieu à un allongement de la bande satellite vers les faibles énergies, mais avec conservation de la surface totale.

2 - Deuxième comparaison théorie-expérience effectuée avec les énergies de liaison calculées pour le neptunium.

Une autre comparaison entre cette expérience et les prévisions théoriques a pu être faite très récemment grâce à une série de calculs d'énergies de liaison effectués par N. Bessis [BE(69)] pour l'atome de neptunium N fois chargé.

Ces calculs présentent un grand intérêt parce qu'ils portent sur un nombre important d'états de charge avec, pour certaines charges, différents essais de configurations, de manière à retenir la configuration de l'atome qui présente le minimum d'énergie totale.

Ces calculs font apparaître une "structure fine" des énergies qu'ignorait le calcul que nous avons utilisé dans la première comparaison. Le tableau IV-g résume les configurations retenues en fonction de l'état de charge N, et la figure IV-40-(a) montre la courbe $(E_{L_2}^{(N)} - E_{L_2}^{(0)})$ de la variation de l'énergie de liaison de la sous-couche L_2 à laquelle nous devons plus particulièrement faire appel pour le calcul théorique de la bande satellite.

N	4f 5/2	4f 7/2	5s 1/2	5p 1/2	5p 3/2	5d 3/2	5d 5/2	5f 5/2	5f 7/2	6s 1/2	6p 1/2	6p 3/2	6d 3/2	7s 1/2	Notes
0	6	8	2	2	4	4	6	4	0	2	2	4	1	2	D
1	6	8	2	2	4	4	6	3	0	2	2	4	1	2	(I)
2	6	8	2	2	4	4	6	2	0	2	2	4	1	2	(I)
3	6	8	2	2	4	4	6	1	0	2	2	4	1	2	(I)
4	6	8	2	2	4	4	6	0	0	2	2	4	1	2	M
5	6	8	2	2	4	4	6	0	0	2	2	4	1	1	M
6	6	8	2	2	4	4	6	0	0	2	2	4	0	1	(I)
7	6	8	2	2	4	4	6	0	0	2	2	4			D
8	6	8	2	2	4	4	6	0	0	2	2	3			(I)
9	6	8	2	2	4	4	6	0	0	2	2	2			(I)
10	6	8	2	2	4	4	6	0	0	2	2	1			D
11	6	8	2	2	4	4	6	0	0	2	2				(I)
12	6	8	2	2	4	4	6	0	0	2	1				(I)
13	6	8	2	2	4	4	6	0	0	2					D
14	6	8	2	2	4	4	6	0	0	1					M
15	6	8	2	2	4	4	6								(I)
16	6	8	2	2	4	4	5								M
17	6	8	2	2	4	4	4								(I)
18	6	8	2	2	4	4	3								(I)
19	6	8	2	2	4	4	2								(I)
20	6	8	2	2	4	4	1								M
21	6	8	2	2	4	4									(I)
22	6	8	2	2	4	3									(I)
23	6	8	2	2	4	2									(I)
24	6	8	2	2	4	1									(I)
25	6	8	2	2	4										(I)
26	6	8	2	2	3										M
27	6	7	2	2	3										(I)
28	6	6	2	2	3										(I)
29	6	4	2	2	4										(I)
30	6	3	2	2	4										D

Configurations successives de l'atome de neptunium N fois ionisé.

notes: D : calcul unique.

M : configuration choisie parmi plusieurs calculs et présentant le minimum d'énergie totale.

(I): interpolation.

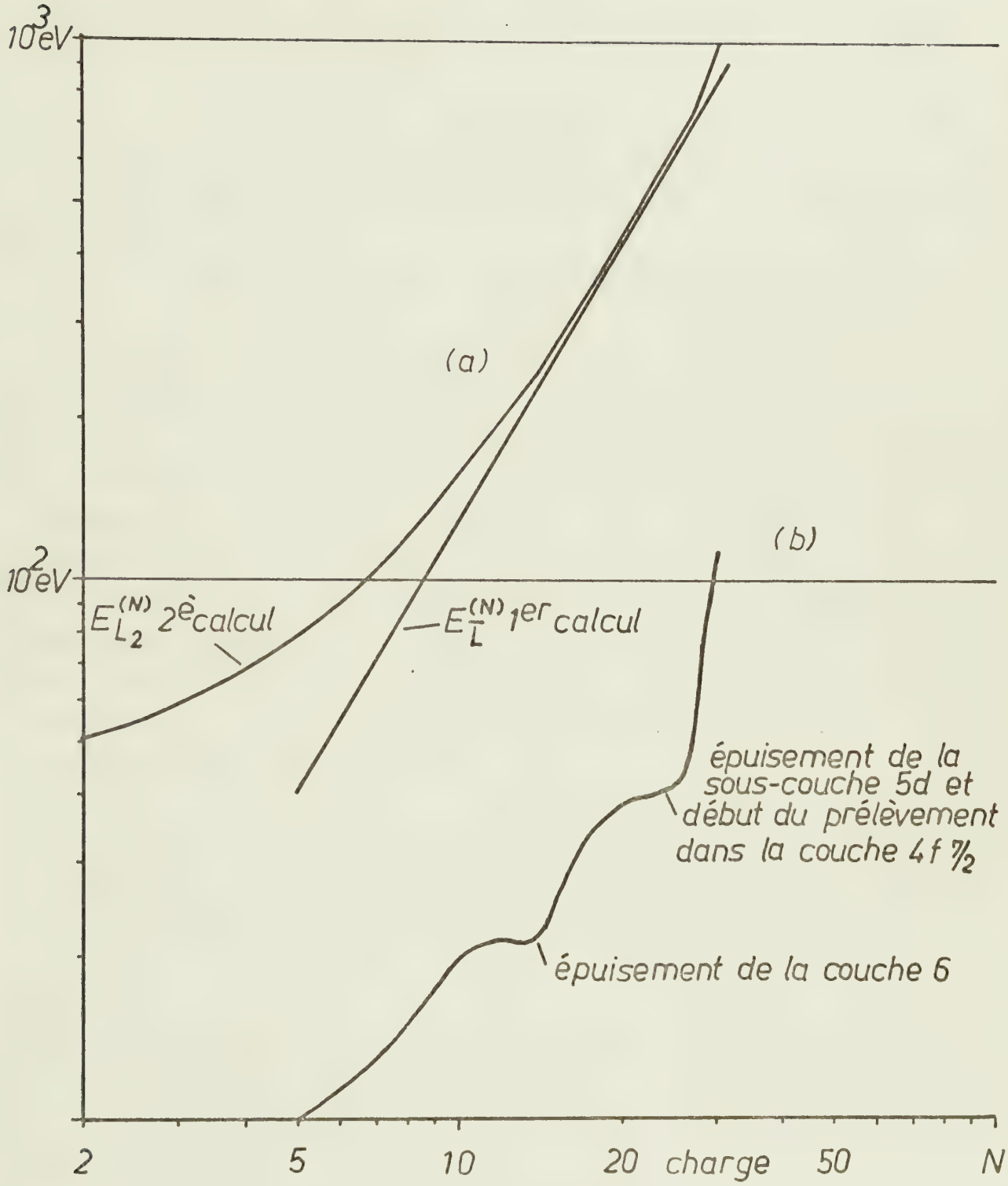

10^3eV
10^2eV
(a)
(b)
$E_{L_2}^{(N)}$ 2è calcul
$E_{L}^{(N)}$ 1er calcul
épuisement de la sous-couche 5d et début du prélèvement dans la couche 4f 7/2
épuisement de la couche 6
2
5
10
20
charge
50
N

Fig. IV-40

Les autres sous-couches profondes fournissent des courbes très semblables. On peut noter sur cette figure l'écart qui existe entre la fonction simple admise précédemment et le résultat du calcul direct, pour le neptunium, et plus complet.

Afin de faire ressortir les effets de "l'épuisement" d'une sous-couche et le début du dépouillement de la sous-couche suivante, nous avons porté sur la figure IV-40-(b) la quantité $\frac{d\,E_{L_2}^{(N)}}{dN}$ pour la couche L_2. Ce résultat est sensiblement différent de la loi simplifiée adoptée dans le paragraphe précédent, qui ne tient pas compte des discontinuités possibles.

Il faut aussi noter que la variation de $E^{(N)}$ en fonction de Z telle que la prévoient les calculs de Watson et Rasmussen ignore certainement toute "structure fine" de configuration. Dans le cas présent, pour une grande valeur de la charge, $(E^{(N)} - E^{(0)})_{Np}$ est supérieur à $(E^{(N)} - E^{(0)})_{Ra}$, au contraire des calculs de ces derniers qui prévoient une diminution régulière avec Z. Il est certain qu'il faut manier avec beaucoup de prudence ce type de formules globales dans lesquelles n'entrent pas explicitement les configurations électroniques.

D'autre part, le degré d'approximation réalisé dans les calculs d'énergies de liaison du neptunium est montré dans le tableau suivant qui donne, pour l'atome neutre, la différence des énergies de liaison calculées et expérimentales :

sous-couches:	K 1s1/2	L_1 2s1/2	L_2 2p1/2	L_3 2p3/2	M_1 3s1/2	M_2 3p1/2	M_3 3p3/2	M_4 3d3/2	M_5 3d5/2	
$E_{th.}-E_{exp.}$ en eV	+ 55	- 71	- 4	- 58	- 43	- 27	- 36	- 4	- 8	Ra
	+189	- 46	+ 9	- 62	- 27	- 23	- 34	- 9	-14	Np

Ces différences vont de 0,5 ‰ à 1 % en valeur relative par rapport à l'énergie des niveaux. Ceci n'est pas étonnant si l'on pense que, pour un atome de Z aussi élevé, la description

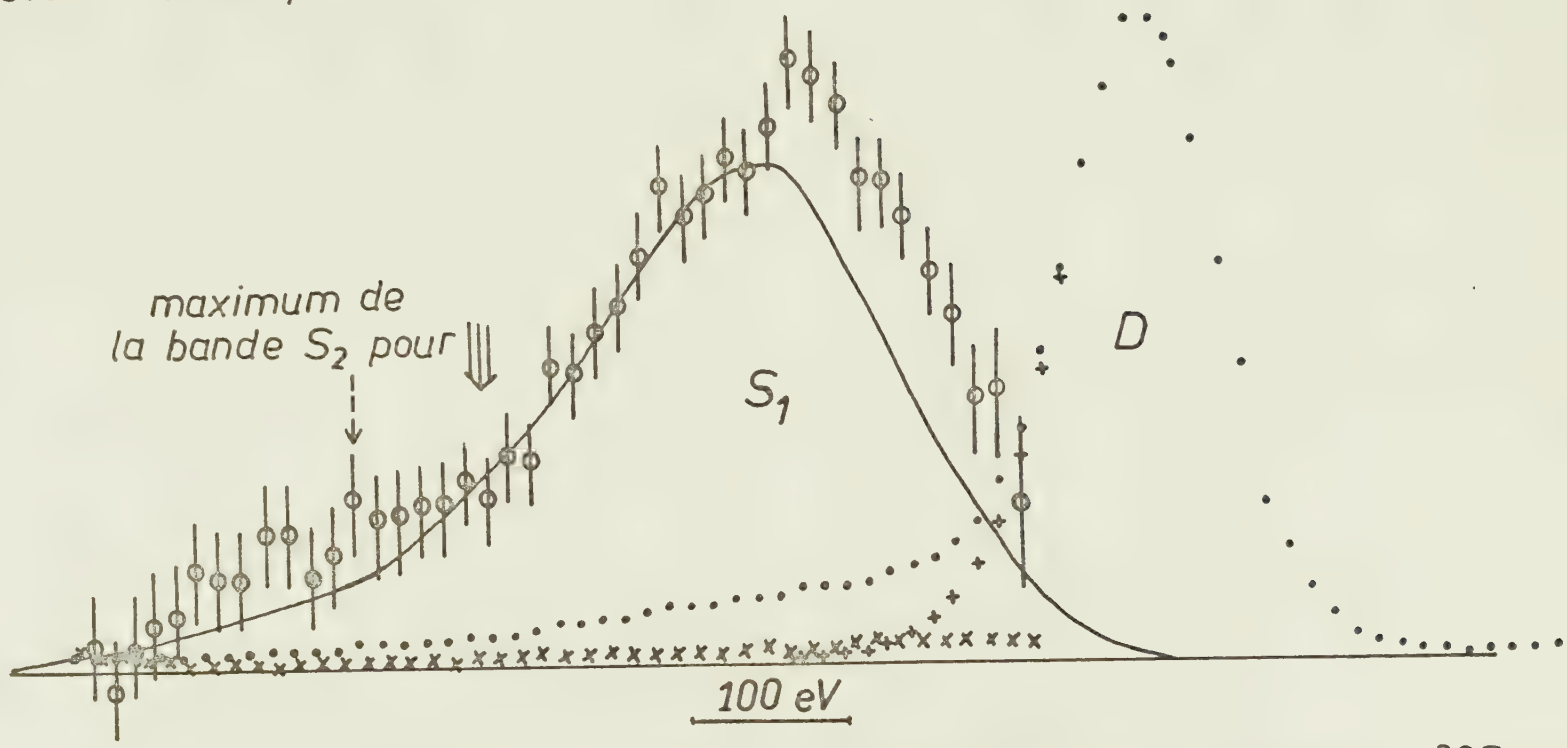
d'un état par une seule configuration est peut-être approchée, que d'autre part l'effet de pénétration des électrons dans le volume nucléaire n'est peut-être pas négligeable surtout pour les électrons s , et qu'enfin le calcul a été effectué en introduisant l'approximation de Släter pour les termes d'échange.

Néanmoins, on peut attendre que ces derniers effets aient moins d'importance dans le cas qui nous intéresse ici, c'est-à-dire pour des différences d'énergies calculées entre atome ionisé et atome neutre, le calcul ayant été effectué avec les mêmes approximations pour l'un et pour l'autre.

Le calcul de la bande satellite dans cette deuxième comparaison a donc été effectué en utilisant la même distribution de charges que précédemment, mais en tenant compte, en plus, d'une deuxième contribution correspondant à des conversions précédées de deux évènements ionisants (cascade : 159 → 103 → 59,5 keV), distribution dont le centre de gravité est déplacé de 7 charges par rapport à la précédente. Pour chaque charge on se base sur les fréquences, observées par Wieclawik [WI (68)] , qui sont multipliées par $\left[\frac{d}{dn} E_{L_2}^{(N)}\right]^{-1}$, l'énergie étant relevée sur la courbe de la figure IV - 40 (a). Les points qui en résultent dessinnent une courbe qui est ensuite convoluée par le profil de la ligne D . Le résultat ainsi obtenu est montré sur la figure IV - 41 avec les mêmes conventions que celles de la figure IV - 35. L'accord est un peu moins bon que celui résultant du calcul plus simplifié précédent, certainement plus imprécis. En particulier le déplacement en énergie de la bande est plus grand par le calcul que par l'expérience (en effet dans ce dernier calcul, le maximum de la bande satellite est déplacé d'environ 20eV par rapport au premier calcul et à l'expérience).

3 - L'ensemble des deux comparaisons montre que, dans la limite des erreurs, s'il y a un léger désaccord, ceci se traduirait plutôt par une bande satellite expérimentale trop forte. Il faut simplement faire à ce propos les remarques suivantes :

• points expérimentaux 0 KV
+ queue basse énergie de la raie D (0 KV) calculée
× résidu des points expérimentaux à 14KV après soustraction de la queue calculée de la raie D (14KV)
ϕ différence des courbes (••••)-(++++)-(××××) amplifiée 10 fois
—— courbe théorique



Conversion L_{II} de la transition de 59,5keV ($^{237}_{93}Np$)

Fig. IV-41 (2ème calcul - § B - 2 -)

- Il est toujours délicat, dans des tracés de densitogrammes, de fixer avec beaucoup de précision le fond qu'il convient de soustraire.

- Les calculs dépendent étroitement de la distribution de charges adoptée qui est celle donnée par Wieclawik [WI (68)] . Les deux types d'expériences ont été conduites avec un vide suffisamment élevé (2 à 3.10^{-6} mm Hg) pour qu'il n'y ait pas de modification des charges par recombinaison dans le gaz résiduel.

- La probabilité d'émission γ n'étant pas influencée par l'état du cortège électronique, une modification du rapport I_S/I_D par rapport aux prévisions du schéma ne peut que résulter d'une modification des coëfficients de conversion. Ceci à son tour se traduit par une modification de la période puisque $\frac{1}{\tau} = \lambda\gamma(1 + \alpha_t)$.

Une analyse du dispositif expérimental nous a montré que la relation qui existe entre I_S/I_D et $\lambda_{e_1}/\lambda_{e_N}$ (où λ_e désigne la probabilité par unité de temps d'émission d'un électron et où les indices 1 et N se rapportent aux états de charge faibles et élevés respectivement) dépend étroitement du spectre de vitesses des atomes de recul sortant de la source.

En effet, un atome animé d'une vitesse $v = kv_m$, où v_m est la vitesse de recul maximum, et où $k \leqslant 1$, doit parcourir une distance $\frac{\ell}{\cos\theta}$ avant d'atteindre la zone utile de largeur ε. La probabilité d'émission de l'électron dans cette zone est donc proportionnelle à $\frac{\lambda\varepsilon}{kv \cdot \cos\theta} \times \exp\left(-\frac{\lambda\ell}{kv.\cos\theta}\right)$. L'intégration de cette expression a été effectuée pour quelques formes simples de spectres de vitesses : $I(k) = C^{te}$ entre 0 et 1 et

$I(k) = C^{te}.k$. Les calculs montrent que le rapport I_S/I_D expérimental observé varie bien plus lentement que la période.

Dans le but de vérifier par une voie différente une éventuelle variation de période du niveau de 59,5 keV, nous avons réalisé des expériences, dont la figure IV - 42 montre le principe : l'ensemble du dispositif a été placé dans un champ de 7500 gauss où les électrons, émis par les atomes en vol, décrivent des spirales étroites ($\emptyset \sim 2$ mm) en suivant les lignes de force du champ. Ce dispositif comprend :

- La source mince ($\sim 1\,\mu g/cm^2$) d'^{241}Am, dont la longueur est parallèle aux lignes du champ.

- Un canaliseur donnant un faisceau d'ouverture 12 degrés, et empêchant les particules α de venir impressionner la plaque photographique.

- Deux électrodes déflectrices portées à des tensions +V et -V, destinées à dévier les atomes fortement chargés, dont la séparation avec ceux faiblement chargés serait insuffisante par la seule action du champ magnétique.

On observe ainsi une image projetée, sur la plaque photographique, des coordonnées x, y des points d'émission d'électrons : un faisceau central non ou peu dévié (charges nulles ou faibles) et un faisceau s'écartant en éventail du faisceau central et donnant l'image des trajectoires des charges élevées. La décroissance de l'intensité en fonction de la

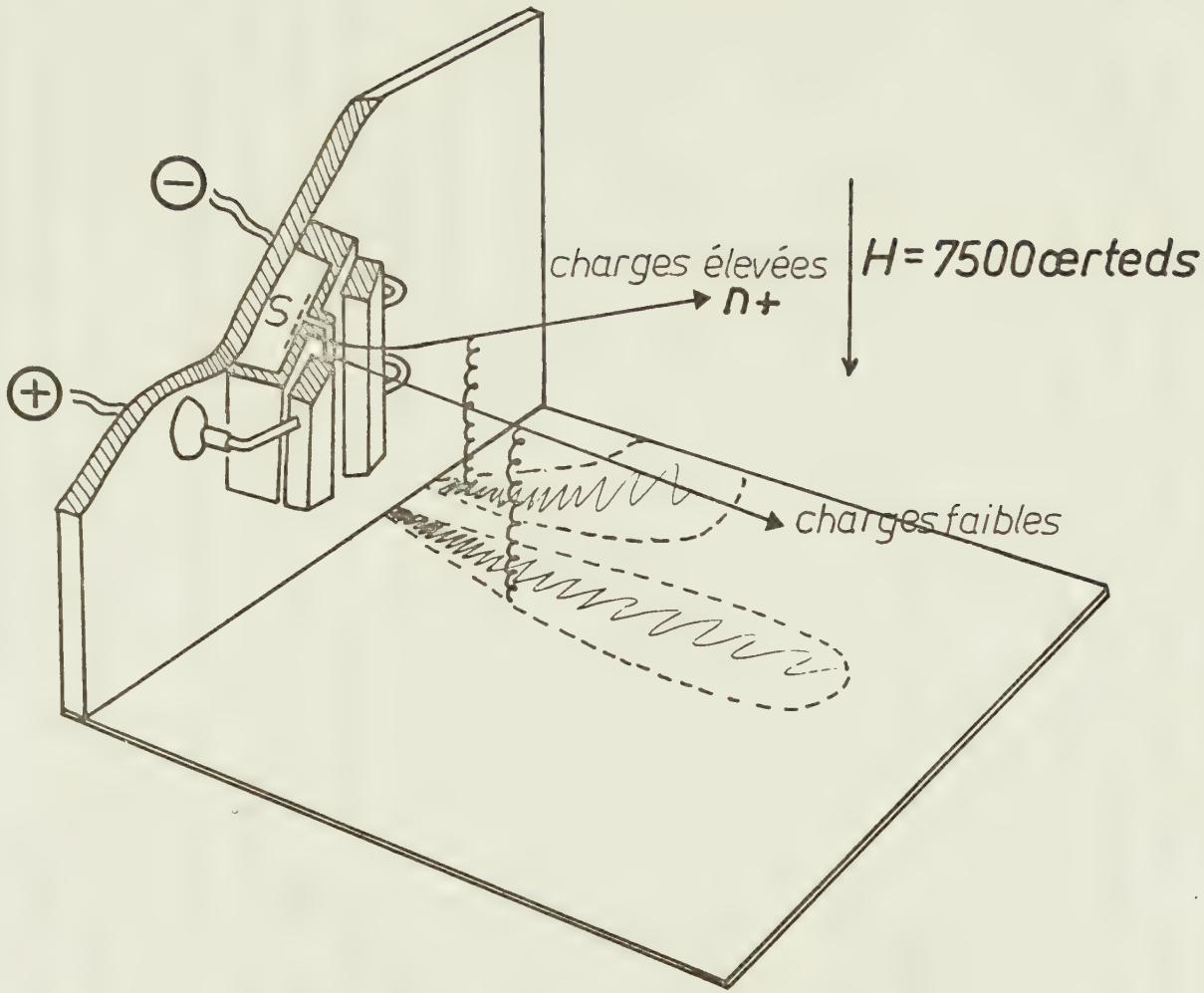


Fig. IV-42

distance parcourue, dépend de la période du niveau de 59,5 keV, mais aussi du spectre des vitesses de recul, qui peut en être déduit. Celui-ci peut ensuite être utilisé pour l'analyse du faisceau des atomes très déviés.

L'analyse de la plaque photographique a été effectuée au densitomètre Vassy, puis un diagramme à trois dimensions a été reconstruit permettant d'intégrer les intensités d'électrons sur les zones correspondant aux charges faibles et aux charges élevées.

Ces expériences, sans être d'une grande précision, montrent néanmoins qu'une éventuelle variation de période n'excèderait pas 20 %.

Par ailleurs Perrin et de Wieclawik ont, dans une expérience délicate et plus précise sur la durée de vie du niveau de 59,5 keV effectué des coïncidences retardées triples $\alpha_{103} \cdot e^-_{43,4} \cdot \gamma_{59,5}$ (Annuaire 1968 IPN) et trouvé que, pour les atomes très chargés, la durée de vie n'est pas modifiée de plus de 10 % par rapport à celle des atomes neutres. Ceci implique que le rapport (S/D) ne devrait pas être modifié de plus de 4 %, mais ceci sans exclure évidemment des variations possibles du rapport $L_1/L_2/L_3$; La figure IV - 36 montre cependant que ces trois lignes présentent des rapports S/D très voisins.

Il faut noter que le rayonnement de 59,5 keV qui se situe entre les états 5/2 5/2 -[523] et 5/2 5/2 - [642] présente des coëfficients de conversion anormaux :

α_{L_1} exp = 1,8 α_{L_1} theor
α_{L_2} exp = 2,8 α_{L_2} theor
α_{L_3} exp = α_{L_3} theor , des anomalies analogues se retrouvant dans les sous-couches M. En effet dans ce cas les règles de sélection sur les nombres quantiques asymptotiques nz, Λ , Σ sont violées, la transition radiative est très interdite (facteurs d'interdiction : $F_W = 5.\ 10^{-6}$, $F_N = 3.\ 10^{-2}$) et les termes de pénétration, contenant des facteurs dépendant de la structure dynamique du noyau, n'ont plus un effet négligeable sur la conversion interne car les règles de sélection qui affaiblissent la probabilité de transition radiative E1 sont moins restrictives pour les éléments de matrice de la conversion anormale [CH (56), CH (60), NI (58)].

Cet effet est d'autant plus important qu'il s'agit d'électrons ayant une plus grande probabilité de présence dans le volume nucléaire, en particulier les sous-couches L_1, L_2, M_1, M_2 qui font intervenir des ondes s 1/2 et p 1/2.

Dans le cas des atomes ionisés, comme l'énergie de liaison des électrons des couches internes augmente, il se peut que la variation de la pénétration des orbites électroniques dans le volume nucléaire induise une variation de la conversion, donc une variation de la période du niveau de 59,5 keV. Cependant l'expérience montre que cette variation, si elle existe, reste dans une fourchette assez étroite centrée autour des valeurs observées pour l'atome neutre. L'absence de tous les électrons Q, P, et de quelques électrons O entraîne l'absence de conversion dans les couches Q et P, et la diminution du coefficient de conversion dans la couche O. Ceci se répercute sur le coefficient de conversion total, et donc sur la période du niveau nucléaire d'une façon dont les expériences sur les variations de période dûes à des liaisons chimiques donnent une indication, encore que

dans ce dernier cas, les électrons de valence gardent une certaine probabilité de présence dans l'atome, et que de plus il s'agit de nombres d'électrons de quelques unités.

Influence des liaisons chimiques sur les périodes radioactives et sur la conversion interne.

L'influence des liaisons chimiques sur les périodes radioactives a d'abord été suggérée en 1947 par M. Goldhaber et parallèlement par R. Daudel [DA (47)] et E. Segré [SE (47)] qui ont mis en évidence la possibilité de faire varier la période de capture électronique de ^{7}Be. Différentes expériences ont été réalisées afin de mesurer les différences des probabilités de transition entre Be (métal) et, soit BeO, soit BeF_2 (amorphe ou cristallisé) par Bouchez et al [BO (50), BO (56)], Leninger et al. [LE (49), LE (51)] , Kraushaar et al. [KR (53)] , expériences qui ont conduit à des variations relatives de la probabilité de capture électronique de 1 à 12. 10^{-4}.

Ultérieurement la variation de période provoquée par un changement du taux de conversion interne dû à l'état du cortège électronique a été mise en évidence pour différents composés chimiques dans les cas suivants :

$^{90m}Nb \xrightarrow[24s]{\gamma} {}^{90}Nb$ Cooper et al. [CO (65)]

$^{99m}Tc \xrightarrow[6h]{\gamma} {}^{99}Tc$ Släter [SL (51)] , Bainbridge et al. [BA (53)] Byers et al. [BY (58)] , Porter et al. [PO (60)]

$^{125m}Te \xrightarrow[58j]{\gamma} {}^{125}Te$ Malliaris et al. [MA (66)]

Pour ces éléments les variations relatives des probabilités de transition sont de l'ordre de quelques 10^{-4}, suivant l'état de valence.

Un exemple particulièrement intéressant est la désexcitation de ^{235m}U vers ^{235}U : Shimizu et Mazaki [SH (65), MA (66)] ont mesuré les variations de probabilité de transition pour les composés UC et USi :

$$\lambda (U) - \lambda(UC) = (3,18 \pm 0,50) 10^{-3} \lambda (U)$$

$$\lambda (U) - \lambda(U Si) = (2,21 \pm 0,36) 10^{-3} \lambda (U)$$

Dans ce cas les quatre électrons de valence concernés sont prélevés dans les couches P et Q. Il faut noter qu'ici la transition est de type E3 et de faible énergie (80 eV) ; elle est totalement convertie, la conversion n'étant énergétiquement possible que dans les couches P et Q. On peut donc s'attendre à ce que l'effet de diminution de conversion dans ces dernières couches, soit prépondérant, car l'effet de pénétration dans le volume nucléaire est négligeable pour un rayonnement E3.

En fait, on ne peut pas directement comparer l'effet de telles liaisons chimiques ne mettant en jeu que quelques électrons de valence avec l'effet de l'absence d'en moyenne quatorze électrons des couches extérieures. En effet, dans ce dernier cas, l'augmentation d'énergie de liaison des couches internes n'est pas du tout négligeable et une augmentation du coefficient de conversion dans les couches internes agirait en sens inverse de la diminution de la conversion dans les couches extérieures. Si l'on se place dans le cas d'une conversion normale, et si l'on admet que l'absence de tous les électrons Q et P et de quelques électrons O diminue le coefficient de conversion total d'environ 1 à 2%, compte tenu de la configuration électronique du neptunium, on peut évaluer approximativement les variations des coefficients de conversion dans les couches internes.

En effet, suivant les énergies de liaison pour chaque sous-couche en fonction de la charge de l'atome, on peut évaluer les coefficients de conversion pour des valeurs de Z effectif = Z + ΔZ, avec $\Delta Z = f\ (n, l, N)$. Ce calcul approximatif conduit à une estimation de l'augmentation de la conversion totale de l'ordre de quelques % pour les électrons restants.

A ceci pourrait s'ajouter, comme nous l'avons dit, un accroissement de la conversion dû à une augmentation de l'effet de pénétration pour ce rayonnement E1 anormal et ceci, dans des proportions, que pour l'instant, nous n'avons pas calculées.

On peut seulement dire que l'ensemble de ces trois effets devrait plutôt conduire dans le cas présent, à une diminution de la période pour un atome très ionisé.

A l'heure actuelle, les résultats que nous avons obtenus sur les bandes satellites ne permettent pas de se prononcer avec certitude sur une variation des coefficients de conversion L. Le faible écart entre les résultats expérimentaux et la courbe calculée (Fig IV - 35) serait, comme nous l'avons dit, plutôt dans le sens d'une conversion un peu plus grande dans les atomes ionisés que dans les atomes neutres, c'est-à-dire dans le sens d'une période plus courte.

V - CONCLUSIONS -

Dans ce travail nous avons examiné de façon détaillée le schéma de niveaux d'un noyau situé en bordure de la zone de grande déformation : le radium 223 alimenté par l'émission α du thorium 227.

Il existe en effet deux types de démarches en spectrométrie nucléaire : l'une consiste à survoler un grand nombre de noyaux afin de suivre une caractéristique particulière à travers plusieurs valeurs de Z et N, par exemple moments quadrupolaires, moments d'inertie, déformations, énergie d'une configuration, gap, etc..., l'autre tend à faire porter le poids d'une recherche sur un noyau, étudié de façon approfondie, afin d'y trouver des éléments de comparaison interne.

Sans vouloir trancher sur les intérêts comparatifs de ces deux attitudes qui semblent toutes deux nécessaires, le présent travail se rattache à la seconde méthode qui nous a semblé fructueuse pour une région de Z et N où les descriptions varient rapidement, trop rapidement pour qu'il soit possible de se contenter d'un modèle simple pour rendre compte des propriétés des différents noyaux même relativement voisins.

Le souci, donc, de disposer d'une base expérimentale étendue, nous a amené à introduire, en plus des recherches conventionnelles de spectrométrie, des méthodes adaptées au cas des noyaux impairs à grande densité de niveaux, (près de 60 niveaux d'énergies < 1 MeV), et à filiation complexe :

- spectrométrie γ avec purifications chimique ou physique simultanées aux mesures qui ont permis d'obtenir des spectres à bonne statistiques tout en ne conservant qu'un faible taux de dérivés du radium 223 ;

spectrométrie de coïncidences α-γ et γ-γ à 500.000 et 1.000.000 de canaux qui a permis de départager de nombreux rayonnements complexes dans le spectre direct.

- mesures de vies moyennes utilisant le recul α : la méthode de déformation de la bande Doppler des raies de conversion, lorsque la source est soumise à un gradient de champ , a été adaptée à la spectrographie à focalisation semi-circulaire, ce qui présente l'avantage de fournir des renseignements sur un grand nombre de transitions simultanément.

Une autre méthode, nouvelle pour les émetteurs α, offre des perspectives intéressantes car elle permet d'atteindre les périodes de nombreux niveaux par la détermination de la distance parcourue par les noyaux de recul entre la source et le point d'émission γ (distance très faible dans le cas d'un émetteur α).

Les informations ainsi rendues disponibles ont permis de donner aux 25 premiers niveaux des attributions de spin et de parité et de placer près de 220 transitions dont plus de 50, situées dans la partie basse du schéma, ont des probabilités déterminées en valeur absolue.

Ceci a permis d'établir une systématique des probabilités de transition en unités Moskowsky et d'en tirer certaines tendances, comme par exemple le caractère plus ou moins collectif des rayonnements E2, caractéristique particulièrement utile pour confirmer l'existence de bandes rotationnelles ; ou encore de calculer les facteurs d'empêchement de Nilsson d'un certain nombre de rayonnements électriques entre bandes de rotation.

Sur ces bases, un essai d'interprétation en termes de modèle de Nilsson a été tenté en utilisant à titre de contrôle,

les probabilités de transition. De cet essai on peut tirer quelques conclusions globales :

- K n'est jamais un très bon nombre quantique, seuls des mélanges plus ou moins complexes devront rendre compte des propriétés des niveaux. Ceci ne pourra se faire qu'au moyen d'un calcul de "best-fit" incluant probabilités de transition et énergies des niveaux de toutes les bandes que l'on suppose couplées.
- La déformation moyenne admise a été $\delta^2 \sim 0,17$, mais l'importance des termes d'interaction rotation - vibration de certaines bandes laisse prévoir des variations des moments d'inertie.

On peut se demander jusqu'à quel point un modèle reste applicable lorsque des mélanges, de complexité croissante, sont nécessaires à l'interprétation. On arrive rapidement à un point où le nombre de paramètres dépasse celui des données, d'autant plus que l'on sait bien que les probabilités de transition ne donnent pas un accord parfait dans l'état actuel des calculs théoriques.

L'interprétation de la partie supérieure du schéma ($>$ 700 keV) où l'on attend les bandes β et γ vibrationnelles nécessitera encore un grand effort expérimental. A défaut de lignes de conversion mesurables, et à défaut de pouvoir effectuer des corrélations angulaires conventionnelles, par suite de la très faible alimentation α de ces niveaux (10^{-5} à 10^{-6} par unité de désintégration α), une telle recherche pourrait peut-être faire appel à l'orientation nucléaire qui serait singulièrement compliquée ici par l'existence du recul α préalable à l'émission γ.

Enfin nous avons pu indiquer la présence, à relativement basse énergie (330 keV) de niveaux de vibrations octupolaires

résultant du couplage du nucléon célibataire avec les vibrations octupolaires du coeur. Ceci est très vraisemblable si l'on considère que les niveaux de vibrations octupolaires $I = 1^-$ $(K = 0)$ dans les noyaux pair - pair voisins sont situés particulièrement bas en énergie, ($\sim$ 250 keV) dans cette région.

Nous avons par ailleurs suggéré que les états à caractère vibrationnel β et γ à un phonon sont susceptibles d'être à des énergies faibles dans ce noyau, mais une étude plus poussée des radiums pairs serait nécessaire pour confirmer cette interprétation.

- Ce travail comporte ensuite l'étude de deux phénomènes liés à la conversion interne :

- les spectres Auger KLL, car, dans le cas présent de grande densité de niveaux, les raies Auger sont imbriquées avec les lignes d'électrons de conversion et ces dernières ne peuvent être déterminées que si les premières sont bien connues, ceci sans parler de l'intérêt propre de la question.

- les phénomènes liés au recul α dans le vide qui donnent lieu à des déformations des lignes de conversion, un effet particulier étant l'apparition de "bandes satellites" dues à l'émission d'électrons par des atomes de recul très ionisés. Ici encore, cette question possède un intérêt propre de par l'ouverture sur les problèmes de réarrangements électroniques.

Les recherches concernant les électrons Auger KLL, après avoir débuté dans le sens de faciliter la spectrométrie nucléaire, ont débouché sur la question des doublets, prévus dans le cadre du couplage intermédiaire, mais qui sont mal connus, car difficiles à déceler, dans les éléments très lourds.

Une mise au point effectuée en tenant compte des différents types de couplages, montra la nécessité d'obtenir des données expérimentales dans des corps de Z élevé. Ceci n'a pu être fait qu'en amenant la spectrométrie magnétique à une précision très élevée avec un pouvoir séparateur de près de 10^{-4}. Les

données obtenues, jointes aux résultats connus pour les atomes de Z faible et moyen, ont permis de préciser la validité des couplages utilisés suivant les domaines de variation de Z.

Si l'accord sur les énergies est bon, les intensités par contre ne sont rendues que partiellement par les calculs actuels, et pour des petits domaines de variation de Z. Il apparaît qu'un calcul complet serait nécessaire dans le cadre du couplage intermédiaire avec interaction de configurations, en tenant compte des corrections relativistes.

Enfin, l'effet de bandes satellites, que nous avons mis en évidence dans les spectres d'électrons de conversion a donné lieu à une confrontation avec des calculs d'énergies de liaison électroniques d'atomes ionisés, par une méthode Hartree-Fock - Släter tenant compte des effets relativistes. L'accord entre expérience et prévision théorique, sans être excellent, est valable, eu égard aux difficultés expérimentales que l'on rencontre quand il s'agit d'isoler des faisceaux d'atomes de recul. Un parcours minime dans la matière impose en effet des activités spécifiques très faibles.

Dans un nombre limité de cas, ce phénomène permettra d'étudier la variation de vie moyenne des états nucléaires dans des atomes très ionisés et d'accentuer ainsi un effet, très faible, qui a été mis en évidence dans les expériences où la composition chimique agit sur la probabilité de présence de quelques électrons de valence.

Bibliographie Chapître II

AR (39) R. ARNOULT. Am. Phys. 12 (1939) p. 297

DA (11) J. DANYSZ. Le Radium 9 (1912) p. 1

DE (58) J. DELESALLE. Thèse de 3ème cycle Paris (1958)

FR (67) M. FRILLEY. Nucl. Instr. Meth. 49 (1967) p. 356

GA (65) F. GAUTIER. Thèse 3ème cycle Paris (1965)

NO (64) T. NOVAKOV, J.M. HOLLANDER, R.L. GRAHAM
Nucl. Instr. and Meth. 26 (1964) p. 189

PA (65) P. PARIS, G. SEIGE. Nucl. Instr. and Meth. 35 (1965) p.242

RO (56) S. ROSENBLUM, J. SANT'ANA, M. VALADARES
J. Phys. Rad. 17 (1956) p. 112

SA (63) J. SANT'ANA DIONISIO. Thèse doctorat d'Etat Paris (1963)

SL (62) H. SLATIS. Nucl. Instr. 16 (1962) p. 51
Ark. f. Fys. 22 (1962) p. 517

SL (65) H. SLATIS. Ark. f. Fys. 29 (1965) p. 485

Bibliographie Chapitre III

AB (63) H. ABOU-LEILA, R. FOUCHER, A.G. DE PINHO, N. PERRIN, M. VALADARES. J. Phys. Rad. 24 (1963) 857

AG (69) P. AGUER. Thèse 3è cycle Orsay (1969)

AL (57) G. ALAGA. Nucl. Phys. 4 (1957) 625

AN (68) B.L. ANDERSEN. Nucl. Phys. A 112 (1968) 443.

BA (64) G. BASTIN-SCOFFIER, C.F. LEANG, R.J. WALEN. Comptes-rendus Ac. Sc. Paris 258 (1964) p. 6397

BE (67) F.H. BERNTHAL, J.O. RASMUSSEN. Nucl. Phys. A 101 (1967)513

BJ (63) S. BJØRNHOLM, M. LEDERER, F. ASARO, I. PERLMAN. Phys. Rev. 130 (1963) 2000

BR (61) F. BRAGANÇA GIL, R. FOUCHER, G.Y. PETIT. J. Phys. Rad. 22 (1961) p. 289

BR (65) Ch. BRIANÇON, R. FOUCHER, J.M. HUC. Comptes-rendus 261 (1965) p. 3366

BR $(66)_a$ Ch. BRIANÇON, C. VIEU. Comptes-rendus Ac. Sc. Paris 262 (1966) p. 1306

BR $(66)_b$ Ch. BRIANÇON, M. FRILLEY. Comptes-rendus Ac. Sc. Paris 263 (1966) p. 1261

BR $(67)_a$ Ch. BRIANÇON. Comptes-rendus Ac. Sc. Paris 264 (1967) p. 1682

BR $(67)_b$ Ch. BRIANÇON, R.J. WALEN, C. VIEU, C.F. LEANG. Communication - Congrès de Bordeaux (Mars 1967)

BR $(67)_c$ Ch. BRIANÇON, C.F. LEANG. Journal de Physique C1 29 (1968) p. 184

BR $(68)_a$ Ch. BRIANÇON, C.F. LEANG, R.J. WALEN. Comptes-rendus Ac. Sc. Paris 266 (1968) p. 1533

BR $(68)_b$ Ch. BRIANÇON, C. VIEU. Comptes-rendus Ac. Sc. Paris 267 (1968) p. 651

BR $(69)_a$ Ch. BRIANÇON, R.J. WALEN. Journal de Physique 30 (1969) 753

BR $(69)_b$ Ch. BRIANÇON, R.J. WALEN. Conférence sur les propriétés des états nucléaires (Montréal - Aout 1969)

CH $(56)_a$ E.L. CHURCH, J. WENESER. Phys. Rev. 103 (1956) 1035

CH $(56)_b$ E.L. CHURCH, J. WENESER. Phys. Rev. 104 (1956) 1382

CH (58) E.L. CHURCH, M.E. ROSE, J. WENESER. Phys. Rev. 109 (1958) 1299

CH (60) E.L. CHURCH, J. WENESER. Am. Rev. of Nucl. Science 10 (1960) 193

CH (66) B.E. CHI. Nucl. Phys. 83 (1966) 97 et communication Interne (1967) New-York

DA (68) W.F. DAVIDSON, R.D. CONNOR. Nuclear Physics A 116 (1968) p. 342

FA (66) A. FAESSLER. Nucl. Phys. 85 (1966) 679

FE (68) V. FEIFRLIK, J. RIZEK. Nucl. Phys. A 121 (1968) 153

FO (59) R. FOUCHER. Comptes-rendus Ac. Sc. Paris 249(1959) 2310

FR (54) M. FRILLEY, S. ROSENBLUM, M. VALADARES, G. BOUISSIERES. J. Phys. Rad. 15 (1954) p. 45 et 16 (1955) p. 378

GR (65) Y.T. GRIN, I.M. PAVLICHENKOV. Nucl. Phys. 65 (1965) 686

HA (69) I. HAMAMOTO, T. UDAGAWA. Nucl. Phys. A 126 (1969) 241

HE (64) C.J. HERRLANDER, R.L. GRAHAM. Nucl. Phys. 58(1964) 544

HY (64) E.K. HYDE, I. PERLMAN, G.T. SEABORG. Nuclear Properties of the heavy elements Chap. III

KE (56) A.K. KERMAN. Dan. Mat. Fys. Medd. 30 (1956) n° 15

LA (69)$_a$ I.L. LAMM. Nucl. Phys. A 125 (1969) 504

LA (69)$_b$ R.C. LANGE, G.R. HAGEE. Nucl. Phys. A 124 (1969) 412

LE (69) C.F. LEANG. Thèse Doctorat d'Etat (1969) ORSAY

LÜ (66) K.E.G. LÜBNER, S.G. MALMSKÜG. Nucl. Phys. 80 (1966) 505

MA (62)$_a$ S.G. MALMSKÜG. Nucl. Phys. 62 (1965) 37

MA (62)$_b$ H.J. MANG, J.O. RASMUSSEN. Mat. Fys. Skr. Dan. Vid. Selsk 2 (1962) n° 3

MA (64) H.J. MANG. Univ. Calif. U.C.R.L. 11326 (1964)

MA (67) H. MARIA, C. YTHIER, P. POLAK, A.H. WAPSTRA. Physica 34 (1967) p 571

MO (58) B.R. MOTTELSON, S.G. NILSSON. Mat. Fys. Skr. Dan. Vid. Selsk 1 (1958) n° 8

MO (64) G. MONSONEGO, R. PIEPENBRING. Nucl. Phys. 58 (1964) 593

MO (66) G. MONSONEGO, R. PIEPENBRING. Nucl. Phys. 78 (1966) 265

MY (65) W.D. MYERS, W.J. SWIATECKI. Nuclear Masses and Deformations UCRL 11980 (1965)

NI (55) S.G. NILSSON. Dan. Mat. Fys. Medd. 29 (1955) n° 29

NI (59) S.G. NILSSON. Mat. Fys. Dan. Vid. Selsk 29 n°16 (1959)

NI (69) B. NILSSON. Nucl. Phys. A 129 (1969) 445

PE (59) G.Y. PETIT. Thèse Doctorat d'Etat (1959) Paris

PE (69) A. PEGHAIRE. Thèse 3è Cycle - Orsay (1969)

PI (57) R.C. PILGER Jr. Thèse 1957 UCRL 3877

PI (66) R. PIEPENBRING. Thèse Doctorat d'Etat - Strasbourg (1966)

PO (65) J.K. POGGENBURG Jr. Univ. of Calif. U.C.R.L. 16187 (1965)

RO (37) S. ROSENBLUM, M. GUILLOT, M. PEREY. Comptes-rendus Ac. Sc. Paris 204 (1937) p. 175

RO (58) ROSE. Internal conversion coefficients Amsterdam 1958

SC (55) G. SCHARFF.GOLDHABER, J. WENESER. Phys. Rev. 98 (1956) 212

SL (61) SLIV, BAND. Gamma-Rays (Moscou. Leningrad) 1961

VA (57) H. VARTAPETIAN. Thèse (1957) Paris

VA (62) J. VALENTIN. Nucl. Phys. 36 (1962) 549

VE (62) M.N. VERGNES. Nucl. Phys. 39 (1962) 273

VE (65) M. VERGNES, J.O. RASMUSSEN. Nucl. Phys. 62 (1965) 233

VI $(66)_a$ C. VIEU, Ch. BRIANÇON, G. BASTIN, C.F. LEANG, J. TREHERNE, R.J. WALEN. Bull. Acad. Sc. USSR Phys. Ser. n° 1, 31 (1967) p. 90

VI $(66)_b$ C. VIEU. Thèse 3è Cycle (Orsay 1966)

WA (68) R.J. WALEN, C.F. LEANG. Comptes-rendus Ac. Sc. Paris 266 (1968) p. 734

WI (56) L. WILETS, M. JEAN. Phys. Rev. 102 (1956) 788

Bibliographie IV - A : Effet Auger.

AL (61) R.G. ALBRIDGE, J.M. HOLLANDER. Nucl. Phys. 27 (1961) p. 554

AR (64) G.D. ARCHARD. Cf AS (65)

AS (58) W.N. ASAAD et E.H.S. BURHOP. Proc. Phys. Soc. 71 (1968)p.369

AS (59) W.N. ASAAD. Proc. Roy. Soc. A 249 (1959) p. 555

AS $(63)_1$ W.N. ASAAD. Nucl. Phys. 44 (1963) p. 399

AS $(63)_2$ W.N. ASAAD. Nucl. Phys. 44 (1963) p. 415

AS (65) W.N. ASAAD. Nucl. Phys. 66 (1965) p. 494

AU (25) P. AUGER. Comptes Rendus 180 (1925) p. 65

BE (54) I. BERGSTRÖM, R.D. HILL. Ark. Fys. 8 (1954) p. 21

BE $(57)_1$ J.B. BELLICARD, A. MOUSSA. J. Phys. et le Radium 7 (1957) p. 115

BE $(57)_2$ J.B. BELLICARD, A. MOUSSA, S.K. HAYNES. Nucl. Phys. 3 (1957) p. 307

BI (64) L.C. BIEDENHARN, N.V.V.J. SWAMY. Phys. Rev. 133 B (1964) p. 1353

BR $(68)_c$ Ch. BRIANÇON. Comptes Rendus Acad. Sc. Paris 267 (1968)p.348

BU (35) E.H.S. BURHOP. Proc. Roy. Soc. 148 (1935) p. 272

BU (52) E. BURHOP. The Auger Effect and other Radiation less Transitions

BU (54) E.H.S. BURHOP. non publié - voir réf. ML (54)

BU (55) E.H.S. BURHOP. J. Phys. Radium 16 (1955) p. 625

CA (61) E.J. CALLAN. Phys. Rev. 124 (1961) p. 793

CO (53) E.U. CONDON, G.H. SHORTLEY, The Theory of Atomic Spectra Cambridge University Press (1953)

CH (68) D. CHATTARJI, B. TALUKDAR. Phys. Rev. 174 (1968) p. 44

DI (62) J.S. DIONISIO. Comptes Rendus Acad. Sc. Paris 254 (1962) p. 257

DI $(62)_2$ J.S. DIONISIO. Comptes Rendus Acad. Sc. Paris 254 (1962) p. 1972

ER (61) P. ERMAN, Z. SUJKOWSKI. Ark. Fys. 20 (1961) p. 209

ER (65) P. ERMAN, I. BERGSTRÖM, Y.Y. CHU, G. EMERY. Nucl. Phys. 62 (1965) 401

EW (57) G.T. EWAN. Can. J. Phys. 35 (1957) p. 672

EW (59) G.T. EWAN, J.S. GEIGER, R.L. GRAHAM, D.R. MACKENZIE Can. J. Phys. 37 (1959) p. 174

EW $(60)_1$ G.T. EWAN, R.L. GRAHAM, L. GRODZINS. Can. J. Phys. 38 (1960) p. 163

EW $(60)_2$ G.T. EWAN, J.S. MERRIT. Can. J. Phys. 38 (1960) p. 324

FR (57) C. FROESE. Proc. Roy. Soc. A 239 (1957) p. 311

FR (58) C. FROESE. Proc. Roy. Soc. 244 (1958) p. 390

FR (59) C. FROESE. Proc. Roy. Soc. 251 (1959) p. 534

GA (58) G. GALLAGHER, D. STRÖMINGER, J.P. UNIK. Phys. Rev. 110 (1958) p. 725

GI (67) J. GIZON, J.P. BOUTET. Nucl. Phys. A 103 (1967) p. 9

GI (68) J. GIZON. Nucl. Phys. A 108 (1968) p. 425

GO (28) W. GORDON. Zeits. f. Phys. 48 (1928) p. 11

GR (56) P. GRAY. Phys. Rev. 101 (1956) p. 1306

GR $(61)_1$ R.L. GRAHAM, J.S. MERRIT. Can. J. Phys. 39 (1961)p. 1058

GR $(61)_2$ R.L. GRAHAM, F. BROWN, G.T. EWAN, J. UHLER. Can. J. Phys. 39 (1961)1086

GR (62) R.L. GRAHAM, I. BERGSTRÖM, F. BROWN. Nucl. Phys. 39 (1962) p. 107

HA (35) D. HARTREE, W. HARTREE. Proc. Roy. Soc. A 149 (1935) p 210

HE (60) C.J. HERRLANDER, R. STOCKENDAHL, R.K. GUPTA. Ark. Fys. 17 (1960)p. 315

HO $(62)_1$ O. HÖRNFELDT, A. FAHLMAN, C. NORDLING. Ark. f. Fys. 23 (1962) p. 155

HO $(62)_2$ O. HÖRNFELDT. Ark. Fys. 23 (1962) p. 235

HY (61) E.K. HYDE. UCRL 9642

JO (53) F.A. JOHNSON, J.S. FOSTER. Can. J. Phys. 31 (1953) p. 469

JU (60) B. JUNG, J. SVEDBERG. Nucl. Phys. 20 (1960) p. 630

KA (65) G. KAYE. Nucl. Phys. 68 (1965) p. 529

KE (34) E.H. KENNARD, F. RAMBERG. Phys. Rev. 46 (1934) p. 1034

KR (67) R.J. KRISCIOKAITIS, S.K. HAYNES. Nucl. Phys. A 104 (1967) p. 107

LI (61) M.A. LISTENGARTEN. Izv. Akad. Nauk. SSSR. Ser. Fiz. 25 (1961) p. 792

LI (62) M.A. LISTENGARTEN. Izv. Akad. Nauk. SSSR. 26, n° 2 (1962) p. 182

MA (60) P. MARGUIN, M.A. MOUSSA. J. Phys. Rad. 21 (1960) p. 149

ME (63) W. MEHLHORN, R.G. ALBRIDGE. Z. Phys. 175 (1963) p. 506

MI (52) J. MIHELICH. Phys. Rev. 32 (1952) p. 415

ML (54) M. MLADJENOVIC, H. SLÄTIS. Ark. Fys. 9 (1954) p. 41

NA (60) J.C. NALL, Q.L. BEIRD, S.K. HAYNES. Phys. Rev. 118 (1960) p. 1278

NE (60) J.O. NEWTON. Phys. Rev. 117 (1960) p. 1529

PE (62) L. PERSSON, H. RYDE, K. OELSNER-RYDE. Ark Fys. 21(1962) p. 193

PI (35) L. PINCHERLE. Nuovo Cimento 12 (1935) p. 81

RA (37) E.G. RAMBERG, F.K. RICHTMYER. Phys. Rev. 51 (1937) p. 913

RE (57) A.S. REMENNYI, A.G. SERGIEV, V.I. FADEEV. J.E.T.P. 5 (1957) p. 563

RU (55) R.A. RUBENSTEIN, J.W. SNYDER. Phys. Rev. 97 (1955)p.1653

RY (63) H. RYDE, L. PERSSON, K. OELSNER-RYDE. Ark. Fys. 23 (1963) p. 171

SL (30) J.C. SLATER. Phys. Rev. 36 (1930) p. 57

SO (57) E. SOKOLOVSKI, C. NORDLING, K. SIEGBAHN. Ark. f. Fys. 12 (1957) p. 301

SO (59) E. SOKOLOWSKI, C. NORDLING. Ark. Fys. 14 (1959) p. 557

SUJ(61) Z. SUJKOWSKI. Ark. Fys. 20 (1961) p. 243

SU (61) T. SUTER, P. REYES-SUTER. Ark. Fys. 20 (1961) p. 393

ST (60) R. STOCKENDAHL. Ark. Fys. 17 (1960) p. 553

TO (67) L.H. TOBUREN, R.G. ALBRIDGE. Nucl. Phys. A 90 (1967)p.529

VA (62) J. VALENTIN. Comptes Rendus Acad. Sc. Paris 254 (1962)p.858

WE (27) G. WENTZEL. Z. Phys. 43 (1927) p. 524

WO (64) J.L. WOLFSON, A.P. BAERG. Can. J. Phys. 42 (1964) p. 1781

ZE (57) A.I. ZERNOVOI, E.M. KRISIUK, G.D. LATYSHEV. JETP 5 (1957) p. 563

Bibliographie : IV - B : Bandes satellites

BA (53) K.T. BAINBRIDGE, M. GOLDHABER, E. WILSON. Phys. Rev. 90 (1953) 430

BE (69) N. BESSIS. (Communication privée 1969)

BO (50) R. BOUCHEZ. Thèse Paris (1950)

BO (56) R. BOUCHEZ, J. TOBAILEM, J. ROBERT. Journ. Phys. Rad. 17 (1956) 363

BR $(67)_a$ Ch. BRIANÇON, M. VALADARES, R.J. WALEN. Congrès de Bordeaux (Mars 1967) J. Phys. 29 (1968) C1 - 103

BR $(67)_b$ Ch. BRIANÇON, M. VALADARES, R.J. WALEN. C.R. Acad. Sci. Paris 265 (1967) p. 1496

BR (68) Ch. BRIANÇON, M. VALADARES, R.J. WALEN Congrès de Riga URSS (Janvier 1968)

BR (69) Ch. BRIANÇON, R.J. WALEN. International Conference on Radioactivity in Nuclear Spectroscopy - NASHVILLE (1969)

BU (52) E.H.S. BURHOP. The Auger Effect Cambridge University Press (1952)

BY (58) D.H. BYERS, R. STUMP. Phys. Rev. 112 (1958) 77

CA (44) Y. CAUCHOIS. J. Phys. Radium 5 (1944) 1

CA (65) T.A. CARLSON, M.O. KRAUSE. Phys. Rev. 137 (1965) 1655

CA (66) T.A. CARLSON, W.E. HUNT, M.O. KRAUSE. Phys. Rev. 151 (1966)41

CH (60) E.L. CHURCH, J. WENESER. Ann. Rev. Nucl. Sci. 10(1960) 193

CH (56) E.L. CHURCH, J. WENESER. Phys. Rev. 104 (1956) 1382

CO (35) D. COSTER, R. KRONIG. Physica. 2 (1935) 13

CO (42) E.P. COOPER. Phys. Rev. 61 (1942) 1

CO (65) J.A. COOPER, J.M. HOLLANDER, J.O. RASMUSSEN. Phys. Rev. Letters 15 (1965) 680

DA (47) R. DAUDEL. La Revue Scientifique 162 (1947) 3266

FE (41) E. FEINBERG. J. Phys. SSSR 4 (1941) 423

GE (67) J.S. GEIGER, W. GELLETLY. Communication privée (Oct. 1967)

GE (68) W. GELLETLY, J.S. GEIGER. Congrès de Riga URSS (Janv. 1968)

GU (66) K. GUNTER, F. ASARO, A.C. HELMHOLZ. Phys. Rev. Lett. 16 (1966) 362

GU (68) K.C.K. GUNTER. UCRL 18313 (1968)

HA (60) B.G. HARVEY. Annual Rev. of Nucl. Sc. 10 (1960) 245

HA (66) S. HAGSTRÖM, C. NORDLING, K. SIEGBAHN α, β, γ Ray Spectroscopy (1965)

HU (48) HULUBEI, Y. CAUCHOIS, MANESCU. C.R. Acad. Sci. Paris 226 (1948) 764

KR (53) J.J. KRAUSHAAR, E.D. WILSON, K.T. BAINBRIDGE. Phy. Rev. 90 (1953) 610

KR (67) M.O. KRAUSE, T.A. CARLSON. Phys. Rev. 158 (1967) 18

LE (49) R.F. LEININGER, E. SEGRE, C. WIEGAND. Phys. Rev. 76 (1949) 897

LE (51) R.F. LEININGER, E. SEGRE, C. WIEGAND. Phys. Rev. 81 (1951) 280

LE (66) C.M. LEDERER, J.K. POGGENBURG, F. ASARO, J.O. RASMUSSEN, I. PERLMAN. Nuclear Physics 84 (1966) 481

MA (66) A.C. MALLIARIS, K.T. BAINBRIDGE. Phys. Rev. 149 (1966) 958

MA (66) H. MAZAKI, S. SHIMIZU. Phys. Rev. 148 (1966) 1161

MI (41) A. MIGDAL. J. Phys. USSR 4 (1941) 49

MI (52) J.A. MISKEL, M.L. PERLMAN. Phys. Rev. 87 (1952) 543

NI (58) S.G. NILSSON, J.G. RASMUSSEN. Nucl. Phys. 5 (1958) 617

PE (53) M.L. PERLMAN, J.A. MISKEL. Phys. Rev. 91 (1953) 899

PE (66) N. PERRIN, W. DE WIECLAWIK. Comptes Rendus 262, série B (1966) 511

PO (60) R.A. PORTER, W.G. Mc MILLAN. Phys. Rev. 117 (1960) 795

RI (34) F.K. RICHTMYER, BARNES, RAMBERG. Phys. Rev. 46 (1934) 843

RO (60) C.C.J. ROOTHAAN. Rev. of Modern. Phys. 32 (1960) 179

SE (47) E. SEGRE. Phys. Rev. 71 (1947) 274

SH (65) S. SHIMIZU, H. MAZAKI. Phys. Letters 17 (1965) 275

SI (66) K. SIEGBAHN. α, β, γ Ray Spectroscopy

SL (51) J.C. SLATER. Phys. Rev. 84 (1951) 1261

VA (40) M. VALADARES. Ric. Sci. 18 (1940) 270

VA (47) M. VALADARES, MENDES. C.R. Acad. Sci. Paris 226 (1947)1185

VA (66) M. VALADARES, R.J. WALEN, Ch. BRIANÇON. Comptes Rendus 263 (1966) 313

WA (66) R.L. WATSON. UCRL 16798 (1966)

WA (67) R.L. WATSON, J.O. RASMUSSEN. Journ. of Chem. Phys. 47 (1967) 778

WE (21) G. WENTZEL. Ann. der Fysik 66 (1921) 437

WE (25) G. WENTZEL. Zeits. f. Fysik 31 (1925) 445

WI $(68)_a$ W. DE WIECLAWIK, N. PERRIN. J. Phys. 29 (1968) C1 - 104

WI $(68)_b$ W. DE WIECLAWIK. Comptes Rendus 266 (1968) 577

WI $(69)_a$ W. DE WIECLAWIK. Comptes Rendus 268 (1969) 1268

WI $(69)_b$ W. DE WIECLAWIK. Thèse Paris (1969)

WO (65) J.L. WOLFSON, W.R. DIXON. Nuclear Physics 64 (1965) 433

YA (66) T. YAMAZAKI, J.M. HOLLANDER. Nuclear Physics 84 (1966) 505

DEUXIÈME THÈSE

Propositions données par la Faculté

Vu et approuvé :

ORSAY

~~PARIS~~ le 26 Février 19 70

Le Doyen de la Faculté des Sciences,

UNIVERSITÉ DE PARIS - ORSAY
FACULTÉ DES SCIENCES

G. Poitou

G. POITOU.

~~Vu~~

~~Le Président de l'Académie~~

~~de Paris~~